O R S A Y
Série A
N° d'ordre : 847

T H E S E

présentée

A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

René BENATTAR

Sujet de la Thèse : Etude expérimentale de la phase initiale de l'ionisation produite dans le néon sous l'action du rayonnement d'un laser à rubis.

Soutenue le 30 Septembre 1971 devant la Commission d'examen

MM. J.L. DELCROIX Président

J. DUCUING
C. COHEN-TANNOUDJI } Examinateurs
G. MAINFRAY
J.L. GODART

O R S A Y
Série A
N° d'ordre : 847

T H E S E

présentée

A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

René BENATTAR

Sujet de la Thèse : Etude expérimentale de la phase initiale de l'ionisation produite dans le néon sous l'action du rayonnement d'un laser à rubis.

Soutenue le 30 Septembre 1971 devant la Commission d'examen

MM. J.L. DELCROIX Président

J. DUCUING
C. COHEN-TANNOUDJI } Examinateurs
G. MAINFRAY
J.L. GODART

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Ce travail a été effectué à l'Université de Paris-Sud dans le Laboratoire de Physique des Plasmas.

Je remercie vivement le Directeur, Monsieur le Professeur J.L. DELCROIX, de m'avoir accueilli dans son Laboratoire et de m'avoir fait l'honneur de présider le jury.

Que les Professeurs J. DUCUING et C. COHEN-TANNOUDJI et Monsieur G. MAINFRAY trouvent ici l'expression de ma plus vive reconnaissance pour avoir bien voulu faire partie du jury.

Je remercie tout particulièrement Monsieur J. GODART et tous les membres de l'"Equipe Laser" pour toute l'aide qu'ils m'ont apportée et pour toutes les discussions fructueuses que j'ai eues avec eux.

Je remercie Madame E. CLAUDON et Madame M. DURAND qui ont réalisé la frappe et le tirage de ce mémoire.

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41543716_0013

SOMMAIRE

	Pages
Introduction.	1
Chapitre 1 - Etude théorique de l'ionisation multiphotonique.	7
1.1 - Théorie de perturbation à l'ordre n.	7
1.2 - Probabilité d'ionisation.	12
1.2.1 - Théorie de Bebb et Gold.	12
1.2.2 - Théorie de Morton.	16
1.2.3 - Théorie de Keldish.	16
1.3 - Conclusion.	16
Chapitre 2 - Etude expérimentale.	19
2.1 - Position du problème par rapport à la théorie.	19
2.2 - Action de la température sur l'émission d'un laser à rubis.	20
2.2.1 - Fonctionnement du laser à rubis (3 niveaux).	20
2.2.2 - Effet de la température sur la longueur d'onde d'émission.	23
2.3 - Dispositif expérimental.	24
2.3.1 - Réalisation du laser.	24
2.3.1.1 - Système de refroidissement.	24
2.3.1.2 - Electronique de déclenchement et synchronisation.	26
2.3.1.3 - Etalonnage du laser en longueur d'onde.	27
2.3.2 - Enceinte basse pression et détection des charges.	27
2.3.3 - Mesure de l'énergie et de la puissance.	29
2.4 - Mise en évidence de la résonance multiphotonique.	31
2.4.1 - Résultats expérimentaux.	31
2.4.2 - Considérations sur le volume d'interaction.	31
2.4.3 - Interprétation de l'expérience.	34
Chapitre 3 - Validité de l'interprétation. Action du champ électrique de l'onde.	37
3.1 - Action du champ électrique de l'onde.	38
3.1.1 - Effet Tunnel.	39
3.2 - Effet Stark linéaire.	40
3.2.1 - Champ continu.	40
3.2.2 - Champ rapidement oscillant.	42

.../...

Pages

3.3 - Effet Stark quadratique. 45

3.4 - Elargissement du niveau. 47

3.5 - Déplacement Stark dans un champ électrique haute fréquence. 48

3.5.1 - Calcul du déplacement. 48

3.5.2 - Détermination de la polarisabilité du niveau 11p du néon pour $\hbar\omega$ = 1,785 eV. 50

3.6 - Calcul de la largeur Γ_s du niveau $11p|3/2|_{1,2}$. 51

3.7 - Conclusion : conditions d'existence du niveau 11p. 52

Chapitre 4 - Influence des fluctuations d'intensité lumineuse. 55

4.1 - Etude de la structure du rayonnement délivré par un laser multimode. 55

4.2 - Influence de la structure du rayonnement sur la section efficace d'ionisation multiphotonique. 57

4.2.1 - Laser monomode. 61

4.2.2 - Rayonnement incohérent. 61

4.2.3 - Rayonnement partiellement cohérent. 62

4.3 - Etude expérimentale de la lumière émise par le laser. 63

4.3.1 - Détermination du nombre de modes et de leur écart en fréquence angulaire à l'aide d'un interféromètre de Pérot et Fabry. 63

4.3.2 - Intensité de lumière répartie sur chaque mode. 64

4.3.3 - Variation de la fréquence d'émission du laser au cours de son fonctionnement. 66

Chapitre 5 - Détermination de la section efficace d'ionisation multiphotonique du néon. 69

5.1 - Etude du volume d'interaction. Dépendance spatiale du phénomène. 69

5.2 - Détermination de la section efficace à partir des mesures. 73

5.3 - Discussion des résultats. 73

Conclusion. 76

Appendice - Méthode de Bates et Damgaard pour la détermination des moments dipolaires de transition. 78

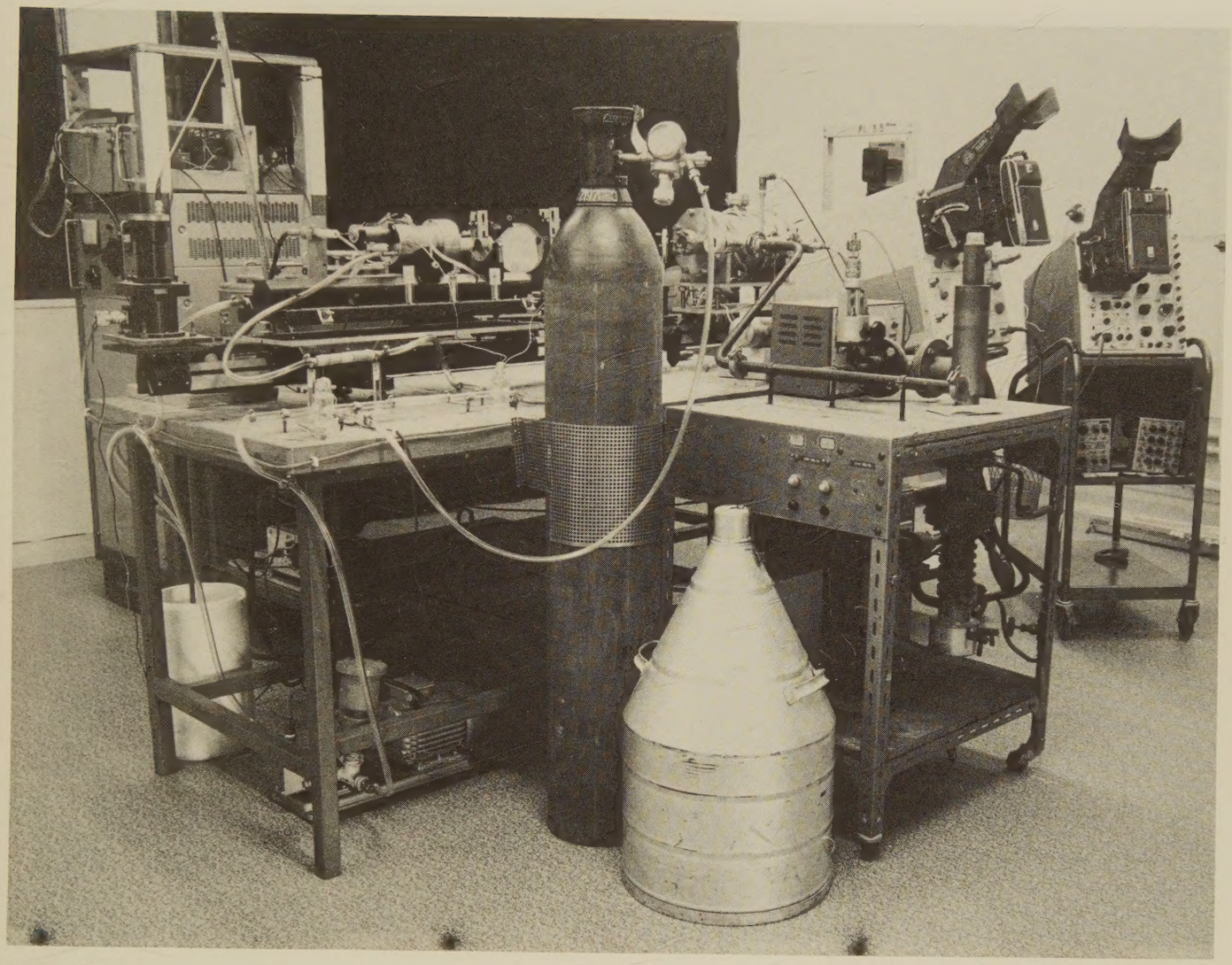
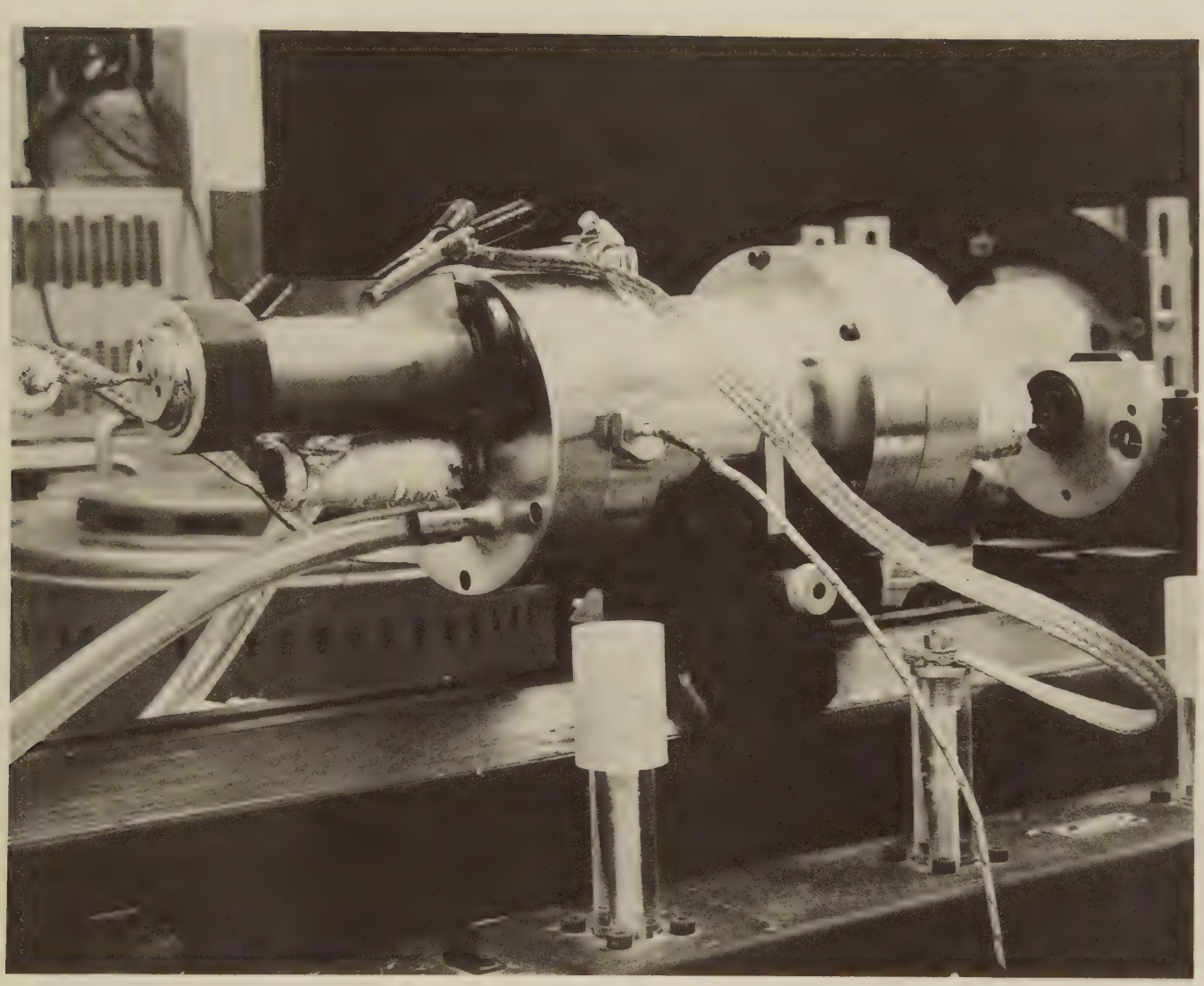
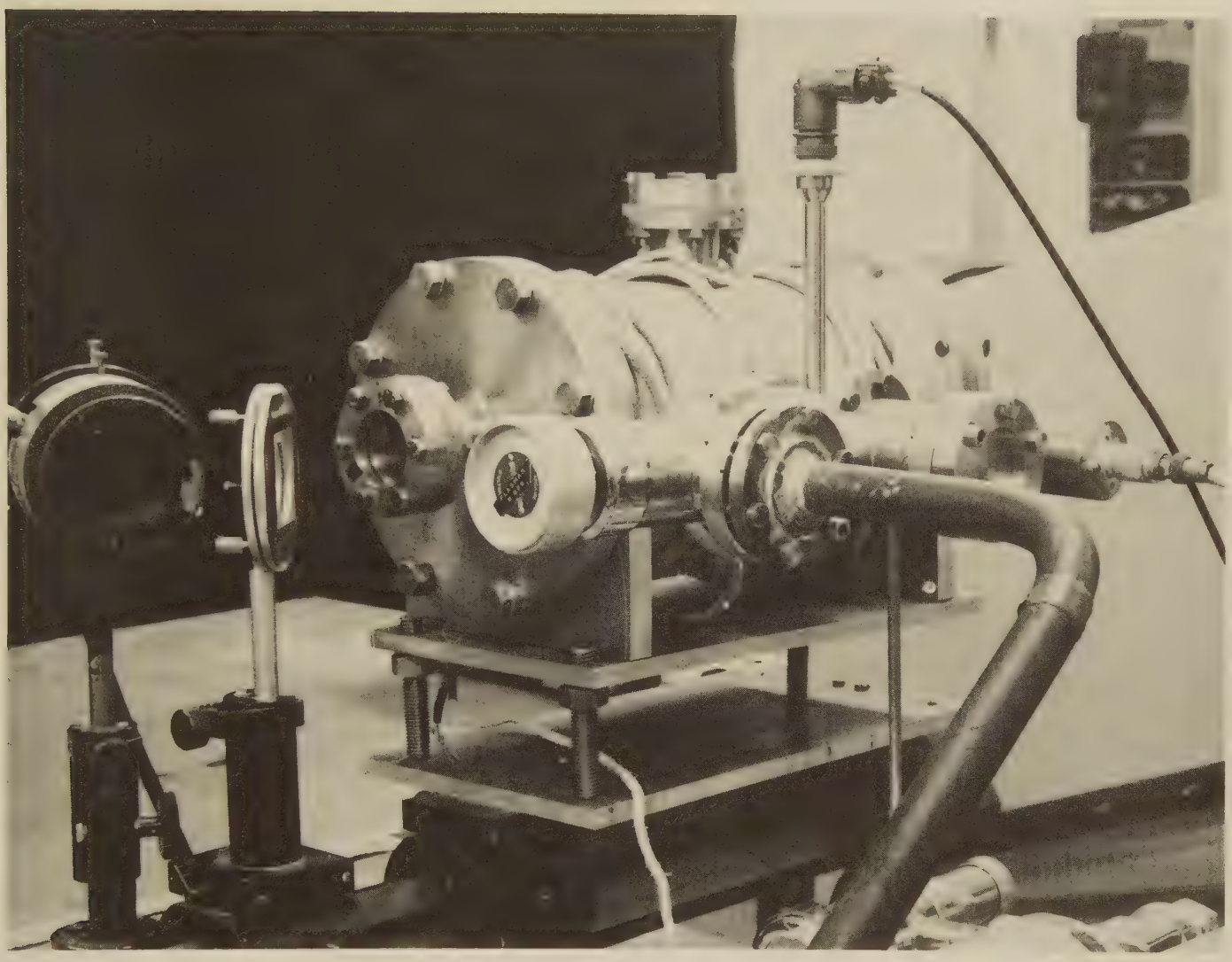


Photo d'ensemble du montage expérimental.



Enceinte support du rubis



Enceinte de focalisation.

INTRODUCTION

EFFET MULTIPHOTONIQUE

Les laser de puissance ont permis, depuis quelques années, grâce à leur émission intense de lumière cohérente, de mettre en évidence de nouveaux mécanismes d'interaction entre le rayonnement et la matière.

Dans l'interaction du rayonnement laser avec les gaz, des résultats expérimentaux nouveaux tels que l'ionisation des atomes par des flux intenses de photons d'énergie hν bien inférieure aux énergies seuil de photo-ionisation ont été observés et décrits dans de nombreuses publications [1 à 9].

Les théories avancées pour expliquer la phase initiale d'ionisation sont non-linéaires, par conséquent la probabilité d'excitation ou d'ionisation par absorption simultanée de plusieurs photons est différente du produit des probabilités d'absorption de photons individuels. Cette probabilité a une valeur très faible. Cette très faible valeur explique pourquoi l'effet multiphotonique n'a pas été observé avant l'apparition des lasers à haut flux.

En toute rigueur les fondements de la théorie multiphotonique qui est une théorie de perturbation d'ordre élevé était connue avant les observations faites à l'aide des lasers. Les premières confirmations de ces théories ayant été obtenues dans le domaine des ondes hyperfréquences où l'on dispose de générateurs de fortes puissances.

Nous nous proposons dans ce travail, l'étude expérimentale de la phase initiale de la formation d'un plasma par un faisceau laser focalisé, cette étude ayant pour objet la détermination de la section efficace d'ionisation multiphotonique de la réaction

$$N h\nu + A \rightarrow A^{+} \qquad \text{avec} \qquad N h\nu \gtrsim E_i$$

où A représente dans notre étude des atomes de Néon,
et hν l'énergie des photons émis par un laser à rubis.

Le choix de la nature du gaz et du type de laser est étroitement lié à la méthode expérimentale mise en oeuvre dans ce travail.

La nature du rayonnement électromagnétique émis par le laser, la dépendance spatiale de l'interaction ainsi que les effets dûs au champ électrique oscillant de l'onde laser sur l'atome, seront considérés comme des paramètres expérimentaux.

Avant de spécifier plus en détail notre étude, nous allons rappeler brièvement les différentes phases d'une décharge dans les gaz produite par un faisceau laser focalisé. Ce rappel nous permettra de voir, les différentes questions posées par ce type de décharge et les hypothèses faites dans les réponses apportées.

Phase initiale de la formation du plasma

La question fondamentale est le processus de formation des électrons primaires ou électrons germes.

L'initiation d'une "décharge laser" fait intervenir un mécanisme non usuel pour la création des premiers électrons, c'est un mécanisme non linéaire dit multiphotonique, en effet contrairement au cas d'une décharge "classique", décharge haute fréquence par exemple, où l'on considère que les électrons germes sont créés par l'ionisation des atomes par le rayonnement cosmique (avec un taux de création d'électrons de quelques centaines par centimètre cube et par seconde), la décharge laser produite par un faisceau focalisé prend naissance dans un volume d'interaction rayonnement-atomes très petit, ayant pour ordre de grandeur le volume focal (quelques 10^{-6} cm^3) et pendant un temps d'interaction très faible, quelques 10^{-9} s.

Dans ces conditions, la probabilité de créer un électron par l'effet des rayons cosmiques est pratiquement nulle et l'on devrait, au mieux, observer une formation d'électrons tout à fait aléatoire, ce qui n'est jamais le cas expérimentalement. Nous sommes donc conduits à faire l'hypothèse suivante : les électrons primaires sont créés par le flux laser lui-même. Cette hypothèse introduit une autre question : comment peut-on produire des charges en nombre suffisant alors que la photoionisation directe du gaz est impossible ? L'énergie des photons émis par le laser étant très inférieure à celles des premiers niveaux d'excitation des atomes de gaz considéré.

Dans le cas d'un laser à rubis et pour du Néon nous avons :

$$h\nu(1{,}78\ eV) \ll E_{ex}(16{,}6\ eV)$$

Pour expliquer le fait expérimental de l'ionisation, l'hypothèse d'une absorption simultanée de plusieurs photons par un atome est avancée ; cette hypothèse constitue le fondement de la théorie multiphotonique.

Le nombre de photons N entrant dans l'interaction est tel que :

$$Nh\nu > E_i$$

avec E_i l'énergie potentielle d'ionisation de l'atome considéré.

Cette hypothèse permet, en utilisant un formalisme quantique de perturbations d'ordre N, de calculer la probabilité de créer une charge.

Les résultats théoriques font apparaître dans la loi reliant la probabilité d'excitation d'un niveau de l'atome en fonction de l'énergie des photons incidents, des résonances ; ces résonances se rapportent aux cas où il s'établit un couplage parfait entre la valeur énergétique du niveau E_s et l'énergie d'un nombre $\mu < N$ de photons ; soit pour la condition :

$$\mu h\nu \simeq E_s \qquad (1)$$

L'existence de ces résonances joue un rôle prépondérant dans les calculs de la probabilité d'ionisation. Le couplage sera fonction de l'énergie des photons et de la position du niveau ; il sera donc important d'étudier les effets du champ électrique de l'onde laser sur les niveaux de l'atome susceptibles d'entrer en résonance avec un nombre donné de photons. En outre la condition (1) doit respecter la loi de parité : le nombre de photons μ doit avoir la même parité que le niveau s considéré.

Le résultat des calculs montre que le nombre d'électrons produits pendant le temps t dans un gaz de densité n_o est :

$$N_e = n_o.v.K.\phi^N.t \qquad (2)$$

où v représente le volume d'interaction rayonnement-gaz

ϕ le flux émis par le laser

$K(\nu)$ la section efficace d'ionisation multiphotonique.

Notre travail a pour objet l'approche expérimentale de ce résultat théorique par la mise en évidence du caractère résonnant du coefficient $K(\nu)$. Un montage permettant de faire varier l'énergie des photons a été réalisé à cet effet.

Après avoir montré qualitativement l'existence d'une résonance nous déterminerons la section efficace d'ionisation à N photons en tenant compte de la structure du rayonnement laser.

Phase d'ionisation du gaz

Le mécanisme de l'ionisation a été étudié théoriquement [10,11] sous forme d'un mécanisme d'avalanche, en considérant les effets de Bremsstrahlung inverse, électron, atome neutre ainsi que les effets dûs à l'ionisation photoélectrique des atomes excités produits. Ces effets permettent le calcul de la durée de l'ionisation en cascade, la croissance de la densité électronique suivant une loi exponentielle.

Il est important de remarquer que la contribution des électrons produits par Bremsstrahlung est défavorable à la mesure du nombre d'électrons produits par effet multiphotonique. Nous serons donc conduits à rendre négligeable l'effet d'avalanche par un choix sur la pression des neutres, pour cela il faudra que le libre parcours moyen électron-neutre soit inférieur aux dimensions caractéristiques du volume d'interaction.

Lorsque la densité électronique atteint un degré d'ionisation de l'ordre de 1 %, l'absorption du rayonnement augmente rapidement, il apparait alors un plasma très lumineux.

Phase de chauffage et d'expansion

Nous rappelons brièvement que dans cette phase l'évolution du plasma est régie par un mécanisme d'onde de choc du type onde

de détonation. La décharge est de forme dissymétrique et les paramètres du plasma, température et densité, n'ont pas de distributions spatiales uniformes (les dimensions du plasma n'étant plus négligeables devant le "libre parcours moyen" des photons).

Cette phase est difficile à étudier car le choc n'est pas plan ni stationnaire et l'absorption n'est pas totale dans l'épaisseur du choc. Son étude a fait l'objet de plusieurs publications [9,12].

Phase de post-décharge

Lorsque l'émission laser est terminée, le plasma ne reçoit plus d'énergie, la température et la densité électronique étant élevées elles créent une surpression locale importante et le plasma a une évolution régie par une onde de choc classique. Cette onde peut être ionisante selon les valeurs des pressions amont et aval.

Lorsque l'onde de choc s'amortie, les effets hydrodynamiques deviennent faibles et le plasma évolue par recombinaison. Cette recombinaison peut traduire différents mécanismes tels que :

- la recombinaison R.C. avec les électrons
- la recombinaison R.C. avec les atomes.
- la recombinaison radiativo-collisionnelle avec influence simultanée des collisions électroniques et des collisions atomiques.

Cette étude est menée dans notre laboratoire et les résultats obtenus ont fait l'objet d'une thèse de doctorat [13].

Par ailleurs, l'étude spectroscopique du plasma dans cette phase a conduit à la mise en évidence expérimentale de l'effet Stark harmonique (effet prévu théoriquement par Baranger et Mozer [14]) par l'observation, dans l'hélium, de la raie $4^3F - 2^3P$ interdite dans l'approximation dipolaire par les règles classiques de sélection et de raies satellites de part et d'autre de cette raie [15] (ce sont les microchamps ioniques qui ont pour effet de lever l'interdiction.

Plan du travail

L'étude expérimentale de la théorie multiphotonique et la détermination de la section efficace multiphotonique du néon sont exposées en différents chapitres de la manière suivante :

Le premier chapitre traite de la théorie multiphotonique ; nous montrons comment, à l'aide d'une théorie de perturbation, il est possible de calculer la section efficace d'ionisation multiphotonique. Nous faisons ressortir les paramètres principaux dont elle dépend.

Le deuxième chapitre est principalement expérimental. Après avoir situé notre problème par rapport à la théorie, nous montrons, par la mesure d'une résonance dans la loi reliant le nombre de charges formées à l'énergie des photons, que le phénomène "d'initiation" est bien multiphotonique. Le dispositif expérimental utilisé est essentiellement composé d'un laser à rubis dont la fréquence varie en fonction de la température du barreau et d'une enceinte basse pression où se fait l'interaction matière-rayonnement et dans laquelle il est possible de collecter les charges électriques qui en résultent.

Nous discutons dans le troisième chapitre, de l'influence d'un champ électrique intense (rayonnement laser) sur les niveaux d'énergie de l'atome de néon. Cette étude, compte tenu des résultats expérimentaux obtenus, nous permet de fixer l'ordre N du phénomène multiphotonique.

Au quatrième chapitre, nous étudions par interférométrie Pérot et Fabry, la structure de la lumière. Nous montrons que l'intensité de la lumière émise par un laser qui fonctionne sur plusieurs modes, fluctue rapidement au cours du temps, autour de la valeur moyenne détectée par une cellule photoélectrique. Nous relions la configuration multimode du rayonnement électromagnétique à la section efficace d'ionisation multiphotonique.

Pour terminer, nous déterminons au cinquième chapitre, la section efficace d'ionisation multiphotonique des atomes de néon pour la fréquence du laser à rubis.

CHAPITRE 1

ETUDE THEORIQUE DE L'IONISATION MULTIPHOTONIQUE

La théorie de l'ionisation multiphotonique est fondée sur une théorie de perturbation à l'ordre N.

1.1 - Rappel de la théorie de perturbation à l'ordre N

Nous allons donner les résultats de la théorie de perturbation en utilisant les opérateurs d'évolution.

Soit H l'hamiltonien d'un électron lié de l'atome, en interaction avec un champ de radiation

$$H = H_o + H_I \qquad 1.1(1)$$

H_o est l'hamiltonien du système non perturbé

$$H_o = H_e + H_r$$

avec H_e = Hamiltonien de l'électron
H_r = Hamiltonien du champ de radiation
H_I est l'Hamiltonien d'interaction.

Nous utilisons la représentation intermédiaire ou représentation d'interaction obtenue en effectuant une transformation unitaire sur les kets et les observables de la représentation de Schrödinger.

L'évolution du système au cours du temps est alors uniquement fonction de l'hamiltonien d'interaction H_I. Dans cette représentation la base est constituée par l'ensemble des états propres $|m\rangle$ de l'hamiltonien non perturbé H_o.

Supposons, alors, que le système se trouve dans un état initial $|g\rangle$, état propre de H_o au temps $t = 0$. A un temps t donné, il se trouvera dans un état $|\psi(t)\rangle$ tel que

$$|\psi(t)\rangle = \sum_m b_m(t)|m\rangle$$

Nous supposons qu'il existe un opérateur d'évolution U(t) tel que

$$|\psi(t)\rangle = U(t)|g\rangle$$

L'amplitude de probabilité pour qu'au bout du temps t le système se retrouve dans un autre état propre $|n\rangle$ de H_o est

$$b_n = \langle n|\psi(t)\rangle = \langle n|U(t)|g\rangle$$

où b_n est l'un de b_m précédents.

Par définition la probabilité pour que le système subisse une transition de $|g\rangle$ vers $|n\rangle$ est

$$W_{n,g}(t) = |\langle n|U(t)|g\rangle|^2 \qquad 1.1(2)$$

La probabilité par unité de temps est

$$w_{n,g} = \frac{d}{dt} W_{n,g}(t) \qquad 1.1(3)$$

La résolution de l'équation de Schrödinger revient à déterminer l'opérateur unitaire U(t) par l'équation

$$i\hbar \frac{d}{dt} U(t) = H\, U(t)$$

Comme on ne connait qu'une solution approchée de U(t) soit $U_o(t)$ nous utiliserons la représentation dite "intermédiaire" pour déterminer l'opérateur U(t).

$U_o(t)$ est solution de l'équation non perturbée

$$i\hbar \frac{\partial U_o}{\partial t}(t) = H_o\, U_o(t)$$

Dans cette représentation on construit un nouvel opérateur unitaire

$$U_I(t) = U_o^{*}(t)\, U(t) \qquad 1.1(3)\text{bis}$$

et l'évolution de $U_I(t)$ est solution de l'équation de Schrödinger

$$i\hbar \frac{\partial U_I}{\partial t} = H_I'(t).\, U_I(t)$$

avec $U_I(o) = 1$.

On en tire :

$$U_I(t) = 1 + (i\hbar)^{-1} \int_o^t H_I'(t')U_I(t')dt' \qquad 1.1(4)$$

H_I' est donné par

$$H_I' = U_o^{*}(t)\, H_I(t)\, U_o(t)$$

où $U_o(t)$ est l'opérateur d'évolution correspondant à H_o et $U_o^{*}(t)$ son adjoint

$$U_o(t) = e^{-\frac{iH_o t}{\hbar}}$$

soit $$H_I' = \exp\left(\frac{iH_o t}{\hbar}\right) H_I \exp\left(-\frac{iH_o t}{\hbar}\right) \qquad 1.1(5)$$

H_I' dépend explicitement du temps, t étant argument des facteurs exponentiels $U_I^*(t')$ peut alors s'exprimer par une forme identique à 1.1(4) que l'on remplace dans $U_I(t)$.

Par itération on obtient

$$U_I = 1 + \sum_{n=1}^{\infty} U_I^{(n)}(t) \qquad 1.1(5)\text{bis}$$

où $$U_I^{(n)}(t) = (i\hbar)^{-n} \int_0^t dt_n \int^{t_n} dt_{n-1} \cdots \int^{t^2} dt_1 \; H_I'(t_n) H_I'(t_{n-1}) \ldots H_I'(t_1)$$

$$= (i\hbar)^{-n} \int^t d^n t \; H_I'(t_n) H_I'(t_{n-1}) \ldots H_I'(t_1)$$

Nous allons revenir à la représentation en U(t) en tenant compte des transformations 1.1(3)bis et 1.1(5)bis.

La relation $U(t) = U_o(t).U_I(t)$ donne en utilisant 1.1(5)bis :

$$U(t) = U_o(t) + \sum_{n=1}^{\infty} U^{(n)}(t)$$

avec $U^{(n)}(t) = U_I^{(n)}(t)$

Pour calculer la contribution d'ordre n à la transition entre un état initial $|g\rangle$ et un état final $|f\rangle$, il faut déterminer l'élément de matrice $U_I^{(n)}(t)$

$$\langle f|U_I^{(n)}|g\rangle = i\hbar^{-N} \int_0^t d^N t \; \langle f|H_I'(t_N) H_I'(t_{N-1}) \ldots H_I'(t_2) H_I'(t_1)|g\rangle$$

Prenons l'écriture matricielle de représentation $\{H^o\}$ Hamiltonien non perturbée

$$\langle f|U_I^{(n)}(t)|g\rangle = i\hbar^{-N} \int_0^t d^N t \sum_{m_{N-1}} \sum_{m_{N-2}} \ldots \sum_{m_2} \sum_{m_1} \langle f|H_I'(t_N)|m_{N-1}\rangle\langle m_{N-1}|H_I'(t_{N-1})m_{N-1}\rangle$$

$$X \ldots\ldots X \langle m_2|H_I'(t_2)|m_1\rangle\langle m_1|H_I'(t_1)|g\rangle$$

Les sommations sur les m sont faites sur l'ensemble complet des états propres de H_o (discret + continu).

En se servant de la relation 1.1(5) et en intégrant dans le temps on obtient :

$$\langle f|U_I^n(t)|g\rangle = (-\hbar)^{-N} \frac{e^{i\omega_{f,g}t} - 1}{\omega_{f,g}} M_{f,g}^{(N)} \qquad 1.1(6)$$

Pour éliminer les termes oscillants rapidement, les bornes inférieures des intégrales intermédiaires sont prises telles que $t' \to \infty$. La borne inférieure de l'intégrale finale est prise à t = 0 ; de cette manière on s'arrure que l'état final n'est pas occupé avant que la perturbation ne survienne.

$$M_{f,g}\, M_{f,g}^{(N)} = \sum_{m_{N-1}} \sum_{m_{N-2}} \ldots \sum_{m_2} \sum_{m_1} \langle f|H_I|m_{N-1}\rangle \frac{\langle m_{N-1}|H_I|m_{N-2}\rangle}{\omega_{m_{N-1},g}} \times \ldots$$

$$\ldots \times \frac{\langle m_1|H_I|g\rangle}{\omega_{m_1,g}} \qquad 1.1(7)$$

Les fréquences ω désignent les fréquences de Bohr

$$\omega_{k\ell} = \frac{E_k - E_\ell}{\hbar}$$

où E_k et E_ℓ sont les énergies propres de l'Hamiltonien non perturbé H_o

comprenant, à la fois, les énergies atomiques et les énergies du champ de rayonnement. Les formules 1.1(6) et 1.1(7) signifient que la transition de l'état f vers l'état g se fait par l'intermédiaire de (N-1) états réels ou "virtuels" (la loi de conservation de l'énergie n'est pas toujours satisfaite dans le passage de deux états intermédiaires successifs).

La transition entre deux états virtuels ou réels correspond à l'absorption ou à l'émission d'un photon.

Ces formules sont générales. On peut les appliquer à tous les problèmes de perturbation d'ordre élevé et en particulier aux interactions multiphotoniques.

1.2 - Probabilité d'ionisation à l'ordre N

En posant :

$$\langle m_\nu | H_I | m_{\nu-1} \rangle = H_{I_{m_\nu m_{\nu-1}}} = V_{k\ell}$$

La probabilité de transition par unité de temps correspondant à l'absorption de N photons s'écrit :

$$w_o = \frac{d}{dt} |\langle f | U_I^{(n)}(t) | g \rangle|^2 = \frac{2\pi\rho_f}{\hbar} \left| \sum_M \sum_L \dots \sum_i \frac{V_{fM} V_{ML} \dots V_{ig}}{\hbar\omega_{oM} \dots \hbar\omega_{oi}} \right|^2$$

$$= \frac{2\pi\rho_f}{\hbar} |K_{a_f, a_g}|^2 \qquad 1.2(1)$$

f est l'état final qui, pour l'ionisation, doit laisser le système atomique dans le continu.

ρ_f est la densité des états pour les énergies dans le continu.

Les V_{ij} sont les éléments de matrice de l'hamiltonien d'interaction.

1.2.1 - Théorie de Bebb et Gold [16]

Dans cette théorie, l'hypothèse de l'approximation dipolaire permet de définir l'Hamiltonien d'interaction $V(\vec{r},t)$ en posant :

$$V(\vec{r},t) = - e\vec{r}.\vec{\varepsilon}(\vec{r},t) \qquad 1.2.1(1)$$

où $\vec{\varepsilon}(\vec{r},t)$ représente le champ électrique de l'onde agissant sur l'électron considéré, ayant le moment dipolaire $\vec{d} = e\vec{r}$.

Le calcul de l'expression 1.2(1) s'effectue en ne considérant que le terme d'ordre 1 du développement de $\vec{\varepsilon}(\vec{r},t)$.

La structure de la formule 1.2(1) suggère un mécanisme de résonance pour les états intermédiaires réels, états pour lesquels $E_g - E_k \sim 0$. Ces états doivent avoir une contribution majeure dans la création d'électrons. Ces cas particuliers se rencontrent physiquement lorsqu'un niveau excité de l'atome a une énergie proche d'un multiple entier ν de l'énergie d'un photon.

$$E_k' - E_g' \sim \nu\hbar\omega \qquad 1.2.1(2)$$

où E_k' est l'énergie du niveau atomique k.

Bebb et Gold ont calculé les valeurs de $K_{af,ag}(1.2(1))$ pour les atomes d'hydrogène et les atomes de gaz rares en faisant les approximations suivantes :

- Les fréquences atomiques

$$\omega_{gk} = (E_g - E_k)/\hbar \qquad 1.2.1(3)$$

sont supposées du même ordre de grandeur loin de la résonance et remplacées par une valeur moyenne.

- Les fonctions d'onde des atomes de gaz rares sont prises du type hydrogénoïde.

L'existence de "pseudo-résonances" constitue la base du calcul approché des éléments de matrice.

Ces "pseudo-résonances", qui proviennent d'un couplage fort entre un niveau atomique et le champ de rayonnement créent une dispersion caractéristique de la probabilité de transition en fonction de l'énergie des photons.

Nous allons éliminer les sommations de $K_{af,ag}$ en utilisant une fréquence moyenne $\bar{\omega}(\nu)$, indépendante de l'état considéré, qui remplacera les fréquences atomiques.

Il faut noter que les fréquences qui se trouvent au dénominateur dans la relation 1.1(7) peuvent se décomposer de la manière suivante :

$$\omega_{m_1,g} = \frac{E_{m_1} - E_g}{\hbar} = \frac{E_{a_1} + (n-1)\hbar\omega - (E_{a_g} + n\hbar\omega)}{\hbar} \qquad 1.2.1(4)$$

$$= \omega_{a_1,a_g} - \omega$$

$$\omega_{m_{N-1},g} = \omega_{a_{N-1},a_g} - (N-1)\omega$$

E_{m_1} représente la somme de l'énergie de l'atome E_{a_1} et de l'énergie du champ.

ω_{a_1,a_g} est une fréquence atomique définie en 1.2.1(3) et ω est la fréquence de l'onde électromagnétique.

L'existence de cette fréquence moyenne $\bar{\omega}(\nu)$ permet de mettre l'élément de matrice K_{a_f,a_g} sous la forme :

$$K_{a_f,a_g} = \frac{\langle f|(\vec{\varepsilon}(r,t)\vec{r})^N|g\rangle}{\prod_{\nu=1}^{N-1}(\bar{\omega}(\nu) - \nu\omega)} \qquad 1.2.1(5)$$

Lorsque dans l'ensemble des fréquences relatives aux différences d'énergie entre niveau atomique et état fondamental se trouve une fréquence voisine de $\nu\omega$ (ν étant un entier, ω la pulsation de l'onde), le terme correspondant devient prépondérant ; on le sépare de la sommation

$$K_{a_f,a_g} = \sum_{a\nu} \frac{\langle f|(\vec{\varepsilon}(\vec{r},t).\vec{r})^{N-\nu}|a_\nu\rangle}{\omega_{a_\nu,a_g} - \nu\omega} \cdot \frac{\langle a_\nu|(\vec{\varepsilon}(\vec{r},t).\vec{r})^{\nu}|g\rangle}{\prod_{\substack{\mu=1 \\ \mu\neq\nu}}^{N-1}(\bar{\omega}_\nu(\mu) - \mu\omega)} \qquad 1.2.1(6)$$

Les états correspondants à ces fréquences $\omega_{a_\nu,g}$ sont appelés états de quasi résonance. La fréquence moyenne $\bar{\omega}(\nu)$ est déterminée rigoureusement par la relation :

$$\sum_{a_\nu} \frac{\langle a_f|(\vec{\varepsilon}(\vec{r},t).\vec{r})^{N-\nu}|a_\nu\rangle\langle a_\nu|(\vec{\varepsilon}(\vec{r},t).\vec{r})^{\nu}|a_g\rangle}{(\omega_{a_\nu,a_g} - \nu\omega)} = \frac{\langle a_f|(\vec{\varepsilon}(\vec{r},t).\vec{r})^{N}|a_g\rangle}{[\bar{\omega}(\nu) - \nu\omega]} \qquad 1.2.1(7)$$

S'il existe plusieurs pseudo-résonances, il y aura autant de termes extraits du produit faisant intervenir la fréquence moyenne.

En fait, $\bar{\omega}(\nu)$ ne varie pas beaucoup avec les paramètres, il peut être remplacé en première approximation par une valeur fixe $\bar{\omega}_v$ telle que :

$$\prod_{\nu=1}^{N-1} [\bar{\omega}(\nu) - \nu\omega] = \prod_{\nu=1}^{N-1} (\bar{\omega}_v - \nu\omega) \qquad 1.2.1(7\text{ bis})$$

ω_v calculé rigoureusement pour l'hydrogène a été trouvé très voisin de 10,2 eV, soit la valeur de l'énergie du premier niveau d'excitation de l'atome ; on l'a choisi égal à cette valeur.

Pour les autres systèmes atomiques (gaz rares par exemple), la fréquence moyenne ne peut pas être calculée ; par analogie avec l'hydrogène elle a été prise égale à la fréquence du premier niveau d'excitation de l'atome.

Les N photons absorbés ayant même énergie, dans les approximations faites, la probabilité d'excitation ou d'ionisation par unité de temps de la relation 1.2(1) prend la forme :

$$w_o = K \phi^N \qquad 1.2.1(8)$$

avec ϕ le flux des photons.
K est la section efficace de photoionisation à N photons.

1.2.2 - Théorie de Morton [17]

Cet auteur a pris pour point de départ la relation générale 1.2(1). Il y a remplacé chaque ensemble d'états intermédiaires i,j...M par un niveau effectif et utilisé les forces d'oscillateur pour estimer les éléments de matrice. Les niveaux effectifs de l'atome ont été choisis comme étant les niveaux les plus proches de chaque "niveau photonique" à condition que les transitions vers ces niveaux ne soient pas interdites par les règles de sélection pour l'atome concerné.

Ces règles de sélection sont telles qu'un nombre de photons de parité donnée ne peut interagir qu'avec un niveau atomique de même parité. Le tableau suivant donne les niveaux effectifs des gaz rares choisis pour interagir avec un nombre de photons donné.

1.2.3 - Théorie de Keldish [18]

Cet auteur traite le problème en utilisant un formalisme semi-classique. Il a considéré un problème à deux niveaux, l'état fondamental et l'état continu pour l'ionisation, et un problème à trois niveaux dans le cas d'un processus résonnant, le troisième niveau étant le niveau d'excitation pseudo-résonnant.

Nous reviendrons plus en détail sur son traitement au chapitre III lorsque nous traiterons des problèmes d'élargissement et de déplacement de niveaux.

L'idée directrice de cette théorie est de traiter l'effet multiphotonique et l'effet tunnel comme deux cas limites de l'interaction d'un rayonnement électromagnétique intense avec un atome.

1.3 - Conclusion

On peut noter que :

- La probabilité d'ionisation par unité de temps, par absorption de N photons par un atome est proportionnelle (1.2.1(8)) au flux de rayonnement électromagnétique élevé à la puissance N.

Dans le volume d'interaction, le nombre de charges formées est donné par la relation 0.1(2)

$$n_e = K\, n_o\, V\, \phi^N\, t$$

He 10590 Å, $(1s2p)^5(2s2p)^42s3p4d$; 6943 Å, $(1s2p)^3(2s2p)^32s2p2s3p$, 5295 Å, $(1s2p)^3(2s2p)^24d$; 3472 Å, $(1s2p)^22s2p2s$.

Ne 10590 Å, (2p ... 0 3s[1½]1)⁴(3p[½]1 3s[1½]2)³3p[½]1 3s′[½]1 3p′[½]1 4s′[½]1 6p[½]0; 6943 Å, (2p ... 0 3s[1½]1)³(3p[½]1 3s[1½]2)²3p[½]1 4s[1½]2 11p[½]1; 5295 Å, (2p ... 0 3s[1½]1)²(3p[½]1 3s[1½]2)²3p′[½]1 6s′[½]1; 3472 Å, (2p ... 0 3s[1½]1)²3p[½]1 3s[1½]1 11p[½]1

Ar 10590 Å, (3p ... 0 4s[1½]1)³(4p[½]1 4s[1½]2)²4p[½]1 3d[½]0 5p[½]1 7s[1½]1; 6943 Å, (3p ... 0 4s[1½]1)²4p[½]1 4s[1½]2 4p[½]1 4s′[½]1 5p[½]1; 5295 Å, (3p ... 0 4s[1½]1)²4p[½]1 4s′[½]0 5p[½]1; 3472 Å, 3p ... 0 4s[1½]1 4p[½]1 4s[1½]2 5p[½]1

Kr 10590 Å, (4p ... 0 5s[1½]1)³5p[½]1 5s[1½]2 5p[½]1 5s′[½]1 5p[½]0 5d[½]1; 6943 Å, (4p ... 0 5s[1½]1)²5p[½]1 5s[1½]2 5p[½]1 6s[1½]1; 5295 Å, (4p ... 0 5s[1½]1)² 5p[½]1 4d[½]0; 3472 Å, 4p ... 0 5s[1½]1 5p[½]1 5s′[½]1

Xe 10590 Å, (5p ... 0 6s[1½]1)³6p[½]1 6s[1½]2 6p[½]1 7s[1½]2 9p[1½]2; 6943 Å, (5p ... 0 6s[1½]1)²6p[½]1 6s′[½]0 7p[½]1; 5295 Å, (5p ... 0 6s[1½]1)²6p[2½]2 8d[2½]3; 3472 Å, 5p ... 0 6s[1½]1 6p[½]1 7s[1½]1

Hg 10590 Å, $(6s\ ^1S_0\ 6p\ ^3P_1)^27s\ ^3S_1\ 6p\ ^3P_2\ 7s\ ^3S_1\ 7p\ ^3P_1\ 8s\ ^1S_0$; 6943 Å, $6s\ ^1S_0\ 6p\ ^3P_1\ 7s\ ^3S_1\ 6p\ ^3P_2\ 7s\ ^3S_1\ 7p\ ^1P_1$; 5295 Å, $6s\ ^1S_0\ 6p\ ^3P_1\ 7s\ ^3S_1\ 6p\ ^1P_1\ 8s\ ^1S_0$; 3472 Å, $6s\ ^1S_0\ 6p\ ^3P_1\ 7s\ ^3S_1$

H 10590 Å, $(1s2p)^3(2s2p)^23d4f$; 6943 Å, $(1s2p)^22s2p2s4p$; 5295 Å, $(1s2p)^22s3p$; 3472 Å, 1s2p2s2p

H* 10590 Å, 2s3p4d; 6943 Å, 2s3p; 5295 Å, 2s4p; 3472 Å, 2s

Li 10590 Å, $2s2p_{1/2}3s3p_{1/2}5s$; 6943 Å, $2s2p_{1/2}3s19–21p$ or $3d_{3/2}19–21f$ 5295 Å, $2s2p_{3/2}5s$; 3472 Å, $2s3p_{1/2}$

Na 10590 Å, $3s3p_{1/2}4s4p_{1/2}7s$; 6943 Å, $3s3p_{1/2}3d_{3/2}$; 5295 Å, $3s3p_{1/2}7s$; 3472 Å, $3s4p_{1/2}$

K 10590 Å, $4s4p_{1/2}5s6p_{1/2}$; 6943 Å, $4s4p_{3/2}6s$; 5295 Å, $4s5p_{1/2}$; 3472 Å, $4s6p_{1/2}$

Rb 10590 Å, $5s5p_{1/2}4d_{3/2}7p_{3/2}$; 6943 Å, $5s5p_{3/2}6d$; 5295 Å, $5s6p_{1/2}$; 3472 Å, $5s7p_{3/2}$

Cs 10590 Å, $6s6p_{1/2}6d_{3/2}6f_{5/2}$; 6943 Å, $6s6p_{3/2}9d_{3/2}$; 5295 Å, $6s7p_{1/2}$; 3472 Å, $6s10p_{3/2}$

TABLEAU DES NIVEAUX EFFECTIFS

Les niveaux de l'hélium sont ceux du système singulet.

N étant tel que $N\hbar\omega \geq E_i$

- Dans cette théorie, il apparait des "résonances" sur la valeur de K lorsque l'énergie d'un niveau atomique est égale à la somme des énergies d'un nombre entier de photons.

- Le fait de traiter le problème par une méthode de perturbation à l'ordre N implique, pour obtenir des effets non négligeables, des flux de rayonnement incident suffisamment intenses. Néanmoins les valeurs de flux doivent être telles que l'approximation dipolaire puisse être conservée.

Les limites de validité de la théorie ont été données par Keldish, Bebb et Gold. Ces derniers ont donné comme valeur limite supérieure aux flux de lumière incidente, 10^{33} photons par centimètre carré et par seconde, dans la zone d'interaction de l'atome avec le rayonnement.

C'est avec le rayonnement de lumière provenant d'un laser de puissance déclenché que de tels phénomènes peuvent être étudiés expérimentalement.

CHAPITRE 2

ETUDES EXPERIMENTALES

2.1 - Position du problème par rapport à la théorie

Nous avons choisi d'étudier les problèmes d'interaction multiphotonique sur les atomes de néon. Nous rappelons que la valeur théorique de l'énergie nécessaire pour ioniser un atome de potentiel d'ionisation E_i par des photons d'énergie $\hbar\omega$ est dans l'hypothèse multiphotonique

$$N\hbar\omega \geq E_i \qquad 2.1(1)$$

Dans le tableau I, nous donnons, pour les différents gaz rares, le potentiel d'ionisation, le nombre théorique N tiré de la relation 2.1(1), le nombre de photons ν, susceptibles de se coupler avec un niveau d'un atome, les différents niveaux de couplage de l'atome avec le champ de rayonnement, l'écart d'énergie en cm^{-1} entre le nombre de photons ν et ces niveaux s ($E_s - \nu\hbar\omega$). Toutes ces valeurs sont données pour des photons d'énergie 1,785 eV (14.400 cm^{-1}) émis par un laser à rubis et pour des photons d'énergie 1,17 eV (9.440 cm^{-1}) émis par un laser au néodyme.

On constate que, plus le potentiel d'ionisation du gaz est élevé, plus le nombre N est important, plus la détermination de la section efficace de photoionisation multiple nécessite un calcul de perturbation à un ordre élevé.

Nous rappelons que nous avons choisi de mettre en évidence expérimentalement l'effet multiphotonique en étudiant l'aspect résonnant que présente la loi de probabilité d'ionisation en fonction de l'énergie des photons incidents. Dans le cas du laser à rubis, l'ionisation du néon se fait en accord avec 2.1.1 à N = 13 photons. Bien que

Gaz	Hélium	Néon	Argon	Krypton	Xénon
E_i (eV)	24,58	21,559	15,755	13,996	12,127
N Laser rubis (1,785 eV)	14	13	9	8	7
ν_R	13 – 12	12 – 11	8	7	6
Niveaux couplés	(1s 3p; 4p; 4f; 5f) (1s 2s)	(10p[½]$_0$; 11p[3/2]$_2$) 4s[½]$_1$	5p[½]$_1$ - 5p[3/2]$_2$	6s[3/2]$_2$ 6s[3/2]$_1$ 4d[5/2]$_{2,3}$ 4d[3/2]$_1$	7p[½]$_1$
$E_r - \nu_R \hbar\omega$ (cm^{-1})	[1003 + ...] [6534]	[-138 + 88] [1131]	[1457, 1980]	[-1176, 909] [1940, 1723, 1156]	[1525]
N néodyme (1,17 eV)	21	19	14	12	11
ν_N	18 – 20	16	13	11 – 10	10 9
Niveaux couplés	1s2s 1s4s	3p[½]$_1$	5d[3/2]$_1$	5d[½]°$_1$ 5p[½]$_0$	3p[3/2]$_2$ 6f[3/2]$_{1,2}$ 7s[3/2]$_2$
$E_r - \nu_N \hbar\omega$ (cm^{-1})	-3649 1492	0	- 206	[-38] [-307]	-210 +336 [229]

Tableau . I – ν_R: Nombre de photons résonnants pour le rubis

ν_N: Nombre de photons résonnants pour le neodyme.

cette valeur soit relativement élevée, nous avons fait nos expériences sur ce gaz pour les raisons suivantes :

- Le néon possède pour la fréquence du laser à rubis, son niveau atomique $11p[3/2]_{1,2}$ très bien couplé avec 12 photons. Le tableau I montre que l'énergie ajoutée de 12 photons est de 88 cm^{-1} inférieure à l'énergie de ce niveau. Cet écart d'énergie est le plus faible qui existe entre l'énergie d'un niveau atomique discret et la somme des énergies d'un nombre entier de photons pour le rayonnement de longueur d'onde 6943,5 Å à 20 °C dans l'air.

- Il est possible de faire varier la longueur d'onde d'émission d'un laser à rubis en changeant la température du cristal. Cette variation est très faible, mais elle est suffisante pour réduire à zéro l'écart d'énergie de 88 cm^{-1}.

Remarque : Il existe des couplages aussi bons et même meilleurs entre un nombre entier de photons du laser au néodyme (1,17 eV) et les niveaux atomiques d'autres gaz rares. Mais il est très difficile de faire varier la fréquence d'émission d'un laser au néodyme. Par ailleurs, la largeur de la raie d'émission d'un tel laser est importante (50 à 100 Å). Or, pour mettre en évidence expérimentalement la résonance multiphotonique, il faut que le couplage entre les photons et le niveau discret soit particulièrement sélectif, et donc que la raie d'émission du laser utilisé soit suffisamment fine.

2.2 - Effet de la température sur l'émission d'un laser à rubis

2.2.1 - Fonctionnement du laser

Le rubis est un cristal formé d'environ 1 % de Cr_2O_3 dans un support d'alumine Al_2O_3, l'élément actif est l'ion chrome Cr^{+++}.

1°) L'état fondamental de cet ion libre est représenté par la notation $^4F_{3/2}$. Il possède trois électrons "d" sur sa couche non saturée (son moment angulaire orbital L vaut 3, son spin S, 3/2).

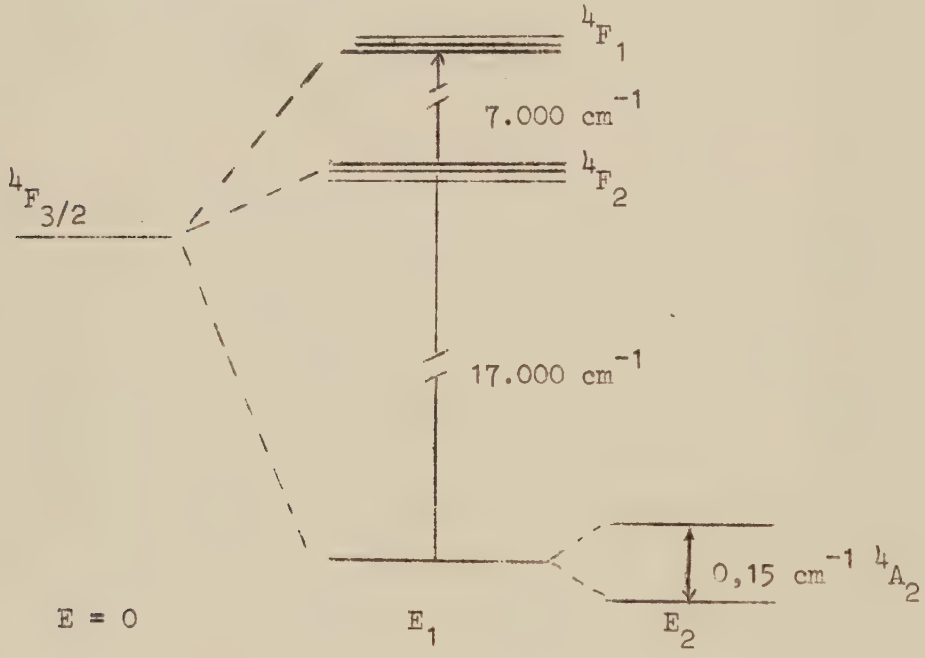
Cet ion est emprisonné dans le réseau cristallin de l'alumine ; de ce fait, il est soumis aux champs électriques du cristal

qui possède une structure octaedrique.

Cette structure donne lieu à un champ électrique résultant E_1 présentant une symétrie cubique, auquel vient s'ajouter un champ à symétrie ternaire, de faible valeur $E_2 << E_1$, du à une légère distorsion de forme dans la structure octaedrique.

Ces champs provoquent une séparation des 7 niveaux dégénérés de l'ion libre ($2L + 1 = 7$). La symétrie des champs cristallins fixe la manière dont les dégénérescences sont levées.

Le schéma ci-après donne la position des différents niveaux en absence et en présence des champs E_1 et E_2.



Le champ cristallin E_1 donne un état triplet noté $^4F_1$, un autre état triplet noté $^4F_2$ et un état singulet $^4A_2$.

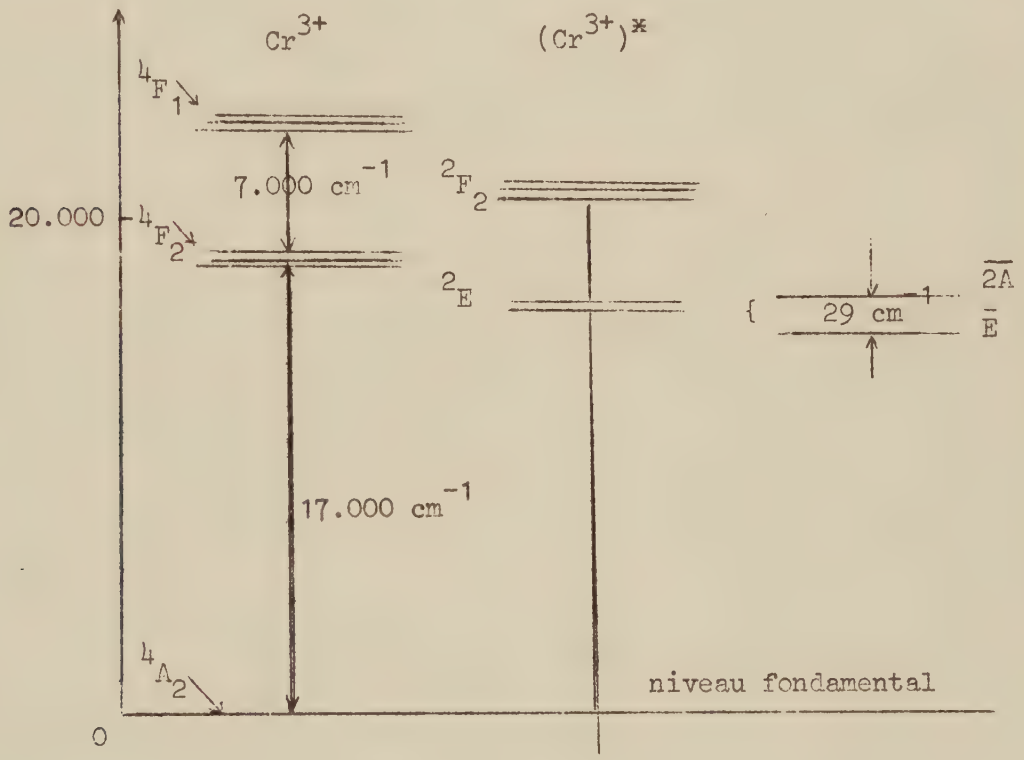
A la température de 300 °K, seul l'état singulet est peuplé. Le champ secondaire E_2 décompose l'état singulet en deux niveaux très rapprochés.

2°) <u>Le premier état excité de l'ion chrome Cr^{+++}</u> isolé est caractérisé par $L = 4$; $S = 1/2$. Il est représenté par la notation ^2G

Sous l'action du champ cristallin E_1, ce niveau ^2G se décompose en 9 niveaux : un singulet $^2A_1$, deux triplets $^2F_1$ et $^2F_2$ et un doublet ^2E.

Le champ E_2 décompose chacun de ces niveaux en des niveaux très rapprochés ; ainsi, un état ^2E donne deux états notés $2\bar{A}$ et $\bar{E}$ (ces notations proviennent de la théorie des groupes) également peuplés à l'équilibre thermique.

Nous donnons, ci-après, les niveaux de l'ion Cr^{+++} dans son état fondamental et ceux de 'lion $(Cr^{+++})^*$ dans son premier état excité. Nous ne représenterons que les états $^2F_2$ et ^2E de $(Cr^{+++})^*$ seuls intéressants pour le fonctionnement du laser.



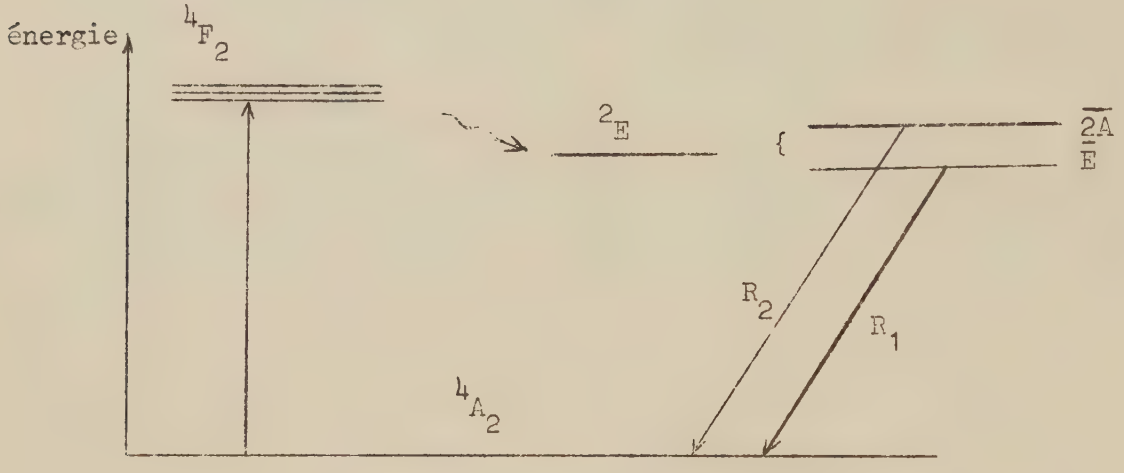
Le fonctionnement du laser peut être schématisé en considérant le rubis comme un solide fluorescent à trois niveaux. Il se décompose en trois étapes :

- Excitation optique (flash) par transition du niveau $^4A_2$ vers les niveaux $^4F_2$.

- Transition non radiative de $^4F_2$ vers ^2E avec un taux de peuplement égal pour les deux sous-états $2\bar{A}$ et $\bar{E}$.

- Emission laser entre $2\bar{A}$ et $\bar{E}$ d'une part et l'état fondamental $^4A_2$ d'autre part.

Il est possible d'observer deux raies R_1 et R_2 ; mais en général on n'observe qu'une seule transition : la raie R_1(6943 Å) car,



d'une part la probabilité de transition pour la raie R_1 est 5 à 7 fois plus élevée que celle correspondant à la raie R_2, d'autre part, il se produit un transfert très rapide de la population du niveau $\overline{2A}$ vers le niveau $\bar{E}$; cette relaxation se fait par les vibrations du réseau qui jouent un rôle très important dans le domaine d'énergie $\overline{2A} - \vec{E}$, soit environ ($\Delta\varepsilon = 3.10^{-3}$ eV). Le temps de relaxation $\overline{2A} \rightarrow \bar{E}$ est dans ces conditions d'environ 10^{-9} s.

2.2.2 - Effet de la température sur l'émission

L'intensité des champs cristallins E_1 et E_2 détermine la valeur de l'énergie qui sépare les niveaux des ions Cr^{3+} et $(Cr^{3+})^{*}$, en particulier la position du niveau supérieur laser $\bar{E}$. Sachant que l'intensité de ces champs est fonction des constantes du réseau et tout particulièrement de la distance d qui sépare les atomes voisins dans le cristal (les différentes formes d'énergie sont fonction du p ramètre d), il s'en suit que toute variation de la température du cristal doit donner lieu d'une façon plus ou moins importante à une variation d'intensité des champs agissant sur les ions Cr^{3+} ; ce qui a pour effet :

1°) Une variation de la longueur d'onde d'émission du laser. Cette variation est donnée approximativement par la relation [19] [20].

$$\lambda(T) = 6943,25 + 0,068\ (T - 20)$$

Remarque : Un calcul théorique précis, tenant compte du taux d'impureté des ions chrome Cr^{3+} dans le cristal, a été fait par [21] et confirme les résultats obtenus.

2°) Une variation de la largeur de la raie laser. La durée de vie du niveau laser supérieur $\bar{E}$ dépend de la température (τ = 3,0 ms à 300 °K et τ = 4,3 ms à 77 °K). Ceci signifie que la probabilité de transition spontanée dépend de la manière dont se fait la relaxation thermique du cristal. Nous devons tenir compte de cette variation de largeur de raie dans l'étude du degré de cohérence de l'émission.

2.3 - Dispositif expérimental

Le schéma de la figure 1 représente le montage que nous avons utilisé. Il a été réalisé dans le but de mesurer le nombre de charges fournies lors de la focalisation du faisceau laser dans du néon à basse pression. Il comprend essentiellement :

- Le laser et son système de variation de fréquence.
- L'enceinte de focalisation où interagissent photons et atomes.
- Les différents systèmes de mesure de puissance et d'énergie.
- L'interféromètre Pérot et Fabry dont nous préciserons l'utilisation dans les expériences décrites au chapitre 4.

2.3.1 - Réalisation du laser

Le laser a été réalisé au laboratoire. Il est constitué d'un rubis de forme cylindrique de 10 mm de diamètre et de 100 mm de long, à faces rigoureusement parallèles. La cavité laser est constituée d'une lame semi-réfléchissante et d'un prisme tournant servant à déclencher l'impulsion géante. Dans cette cavité se trouve le rubis maintenu dans son enceinte de refroidissement.

2.3.1.1 - Système de refroidissement

Nous avons vu qu'il était possible de faire varier la fréquence d'émission du rubis en changeant sa température. Etant données

les considérations du paragraphe 2.1 nous avons deux possibilités de couplage pour mettre en évidence sur du néon le caractère résonnant de la probabilité multiphotonique, soit un couplage du rayonnement laser avec le niveau $11p[3/2]_{1,2}$ et un couplage du rayonnement laser avec le niveau $10p[1/2]_0$ dont l'énergie est inférieure de 135 cm^{-1} à celle de 12 photons émis par le rubis à 20 °C. Le bon fonctionnement du laser nécessitant l'évacuation de la forte quantité de chaleur produite par la lampe flash, un refroidissement énergique s'impose. Ce refroidissement rend difficile le couplage avec le niveau $10p[1/2]_0$ car le couplage n'est possible que par une diminution de la fréquence et entraine un réchauffement du barreau du rubis, d'où un mauvais fonctionnement du laser. Par contre, pour atteindre le niveau d'énergie $11p[3/2]_{1,2}$, il faut augmenter la fréquence d'émission du laser. Cette action s'obtient par refroidissement du barreau de rubis ; elle va dans le sens d'un bon fonctionnement du laser.

L'enceinte dans laquelle est fixé le rubis est représentée sur la figure 2. Cette enceinte est hermétiquement isolée du milieu extérieur. Il est ainsi possible de faire baigner complètement le barreau de cristal dans un fluide à température connue. Cette enceinte contient une lampe flash de forme hélicoïdale, entourée d'un réflecteur en tôle d'aluminium polie ; dans l'axe de cette lampe est fixé le rubis. Le flash est rempli de Xénon sous une pression de 600 torrs. Il est amorcé par une haute tension (50 KV) placée en série avec le banc de condensateur.

La cuve support du rubis est refroidie par une circulation d'azote, gaz propre et non corrosif, évitant toute trace d'humidité qui créerait des dépôts de givre sur les faces du rubis. Ce gaz traverse un serpentin baignant dans de l'azote liquide. Un surpresseur placé en série sur la canalisation met en circulation le fluide réfrigérant.

La cuve laisse passer le rayonnement "cohérent" par deux lames de quartz placées à chacune de ses extrémités. Celles-ci sont réchauffées extérieurement par des résistances, afin d'éviter sur leur face externe toute condensation de la vapeur d'eau contenue dans l'air ambiant. Ces résistances sont constituées de fil conducteur enroulé sur deux tubes cylindriques métalliques dont une extrémité vient s'appliquer sur les lames de quartz.

Un thermocouple cuivre-constantan, ayant une bonne sensibilité pour les températures inférieures à 0 °C, a sa soudure "chaude" au voisinage immédiat du barreau du rubis. La soudure "froide" est plongée dans de la glace fondante. Il permet de repérer sur un millivoltmètre la température du fluide réfrigérant. La courbe d'étalonnage du thermocouple est représentée sur la figure 3.

La température, à l'intérieur de la cuve, est ajustée à l'aide d'une résistance chauffante à travers laquelle passe un courant électrique d'intensité variable. Le fil constituant cette résistance est enroulé sur la canalisation de circulation d'azote, à l'entrée de l'enceinte, suffisamment loin du serpentin de refroidissement. La température de fonctionnement étant toujours inférieure à 0 °C, il se dépose du givre sur tout le circuit de refroidissement à l'exception des fenêtres par où sort le rayonnement. Il est ainsi possible d'avoir un bon isolement thermique.

Le domaine de fonctionnement du laser est compris entre -90 °C et +20 °C. L'énergie des photons émis peut ainsi varier de 1,785 eV à 1,7878 eV.

2.3.1.2 - Electronique de déclenchement et synchronisation

Pour obtenir une seule impulsion géante de lumière cohérente, il est nécessaire d'accorder la cavité Pérot et Fabry du laser, lorsque le rubis est à son maximum de fluorescence. Ceci nécessite le montage électronique représenté sur les figures 4 et 5. Une tension alternative, de même fréquence que la fréquence de rotation du prisme sert à déclencher le laser. Cette tension est amplifiée, mise en forme et dérivée. Les signaux résultants(tops) ont ainsi un front de montée très raide. Ils commandent la grille d'un thyratron de puissance qui permet l'amorçage puis l'allumage de la lampe flash. On règle, par un système de synchronisation se trouvant sur le prisme, le départ des tops en avance par rapport à la position d'accord du prisme tournant de façon à obtenir le maximum de fluorescence du barreau au moment de cet accord. Cette avance est de quelques centaines de microsecondes.

2.3.1.3 - Etalonnage du laser en longueur d'onde

Pour faire cet étalonnage, nous utilisons un spectrographe à réseau dont la dispersion, au voisinage de 6943 Å, est de 11,3 Å/mm.

Nous photographions la raie laser sur une plaque photographique placée dans le plan focal du spectrographe et préalablement impressionnée par le spectre d'une lampe à décharge au néon utilisée comme référence. Nous réalisons plusieurs photographies de ce type en faisant fonctionner, à chaque tir, le laser à une température différente. Pour chaque température d'émission du rubis, la position de la raie laser est repérée par rapport aux deux raies du néon qui se trouvent de part et d'autre. Ces raies correspondent au spectre du second ordre. Elles ont pour longueur d'onde λ_1 = 3472,52 Å et λ_2 = 3466,58 Å. Ainsi la longueur d'onde de la raie laser est déterminée pour chaque température de fonctionnement.

La courbe de la figure 6 représente notre étalonnage. Nous retrouvons bien pour le coefficient de variation de longueur d'onde en fonction de la température une valeur très voisine de 0,06 Å par degré, mesurée par [22].

2.3.2 - Enceinte basse pression et détection des charges

Pour créer des charges par effet multiphotonique, nous focalisons le rayonnement laser dans une enceinte remplie de néon sous faible pression (inférieure à 10^{-2} torr). Nous évitons ainsi la multiplication, sous l'effet du Bremsstrahlung inverse, des premières charges obtenues. Pour les pressions considérées, le rayon moyen r_o de la tache focale est négligeable devant le libre parcours moyen ℓ des atomes soit $r_o \sim 10^{-2}$ cm $\ll \ell \sim 10$ cm.

Le néon utilisé est purifié à 99,99 %.

De part et d'autre de la tache focale se trouve deux électrodes planes distantes de d = 2,4 cm et de dimension bien supérieure à celle de la tache focale. Une tension continue de 5 KV est appliquée à ces deux électrodes. Elle permet de collecter les charges créées par le rayonnement laser. La pression étant suffisamment faible, il n'y a pas

de multiplication des charges au cours de leur collection sur les électrodes : $d/2 = 1{,}2$ cm $< \ell \sim 10$ cm.

Le signal recueilli sur un oscilloscope permet le calcul du nombre de charges. Cet oscilloscope a pour résistance d'entrée 1 MΩ et pour capacité 20 µµF. La forme du signal obtenu est donnée sur la planche I pour des températures différentes du laser et une structure de modes différente (voir chapitre 4).

La première partie du signal correspond à un parasite dû au déclenchement du laser : le frond de montée, très raide des signaux (quelques microsecondes) correspond à la charge de la capacité d'entrée de l'oscilloscope. Ce temps de montée dépend du temps de transit des ions dans l'espace interélectrode et des constantes propres du circuit.

La décroissance du signal représente la décharge de la capacité C dans la résistance d'entrée de l'oscilloscope.

Le nombre de charges collectées est alors donné par :

$$n = \frac{Q}{e} = \frac{C\ V_{max}}{e}$$

où V_m est la tension maximum du signal,
et e la charge de l'électron.

Pour la sensibilité de 5.10^{-3} Volts par carreau, on trouve qu'un signal de 1 carreau d'amplitude représente un nombre de charges :

$$n = \frac{20.10^{-12}\ 5.10^{-3}}{1{,}6.10^{-19}} = 6.10^{+5} \text{ charges}$$

1 carreau sur l'axe des abscisses représente 500 µs.

Sur les photographies d'impulsion laser, le balayage est de 200 ns par carreau.

Remarque : On vérifie que le temps nécessaire aux ions formés pour arriver sur les électrodes correspond bien à celui qu'il faut à des ions de néon pour franchir sans collision, une distance égale à l'espace foyer-électrodes et soumis à une différence de potentiel égale à la d.d.p. de polarisation. Ce temps est de l'ordre de la microseconde.

Nous avons vérifié que le signal électrique correspondant aux charges collectées étaient bien spécifique du néon. Pour cela nous avons rempli l'enceinte avec de l'argon, puis avec du krypton sous une pression égale à celle du néon.

Les planches IIet III donnent les formes de signaux obtenus.

Le temps de montée du signal de détection correspondant à la collection des charges est plus grand. Son sommet s'est arrondi. Le signal provenant du krypton, gaz plus lourd que l'argon, est encore plus arrondi.

Les ions formés se meuvent donc en faisant des collisions. Pour le calcul du temps de transit, il ne faut plus tenir compte de la "chute libre" des ions dans le champ électrique appliqué, mais de leur mobilité. De ce fait la résistance effective du milieu pendant la collection devient beaucoup plus importante. Elle n'est plus négligeable par rapport à la résistance de charge de 1 MΩ. La courbe théorique représentant une collection de ce type [23] a bien l'allure des photos des planches II et III.

2.3.3 - Mesure de l'énergie et de la puissance du laser

Les impulsions du laser sont détectées à l'aide d'une cellule photoélectrique rapide (ITT FW 114 A) de grande sensibilité dans le spectre visible (photo-cathode type S 20). Cette cellule, recevant une partie de la lumière prélevée à l'aide d'une lame semi-transparente placée à 45° par rapport au faisceau, envoie un signal à un oscilloscope de bande passante 1.000 MHz dont le tube est à ondes progressives. L'ensemble cellule-oscilloscope permet de détecter des impulsions à front de montée inférieure à la nanoseconde. La cellule a été calibrée pour donner des amplitudes de signaux correspondant sur l'écran de l'oscillos-

cope à deux carreaux en moyenne. Pour cela, on atténue la lumière arrivant sur la photocathode avec des verres neutres dont le pouvoir absorbant est indépendant de la longueur d'onde et est directement fonction de l'épaisseur.

La cellule est un détecteur quadratique. Son étalonnage se fait à l'aide d'un calorimètre fonctionnant pour la longueur d'onde de 6943 Å. C'est un appareil C.G.E. pour faisceau de diamètre maximum 16 mm ; sa sensibilité est de 230 microvolts par joule.

On enregistre simultanément, pour un tir donné, l'impulsion de lumière, à l'aide de la cellule, et l'énergie contenue dans cette impulsion, à l'aide du calorimètre.

L'aire délimitée par l'impulsion et l'axe des abscisses représente l'énergie mesurée par le calorimètre. ;

$$W = \int P \, dt = K_{joules} \int y \, dx$$

La détermination de K permet de connaître l'énergie correspondant à l'unité de surface d'impulsion. Pour un tir donné nous avons mesuré

$$\int y \, dx = 35{,}25 \text{ mm}^2 \qquad W = 0{,}225 \text{ J}$$

$$K = 6{,}38 \; 10^{-3} \text{ Joule par mm}^2$$

K = puissance par millimètre X temps par millimètre. Le balayage étant de 200 ns par carreau et chaque carreau valant

$$t/mm = 25 \text{ ns}$$

$$P/mm = 0{,}255 \; 10^{6} \text{ W}$$

La puissance par carreau vaut :

$$P/\text{carreau} = 0{,}255\ 10^6 \times 8 = 2{,}04\ 10^6\ W.$$

Un carreau d'amplitude représente 2,04 MW pour une impulsion enregistrée avec une même épaisseur de verre neutre sur la cellule (8,5 mm). La cellule étant calibrée et étalonnée, nous pouvons connaître pour chaque tir la puissance crête et l'énergie en exploitant la photographie de l'impulsion.

2.4 - Mise en évidence de la résonance multiphotonique

2.4.1 - Résultats expérimentaux

Nous avons mesuré le nombre de charges créées par focalisation du faisceau de lumière en faisant varier la fréquence d'émission du laser.

Nous avons choisi, parmi les tirs laser effectués, ceux pour lesquels la puissance crête délivrée, la forme générale d'impulsion et sa largeur à mi-hauteur étaient identiques.

Les résultats expérimentaux sont représentés sur la courbe de la figure 7 [24]. Il apparait nettement un maximum de charges collectées pour une température de barreau de -39 °C, c'est à dire pour une énergie de photons de 1,78584 eV.

2.4.2 - Considérations sur le volume d'interaction [25]

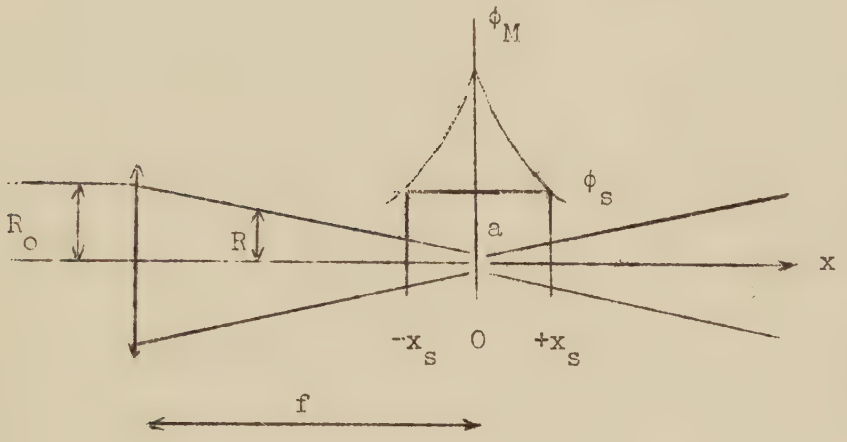
Dans les phénomènes d'ionisation par focalisation d'un faisceau de lumière laser le volume d'interaction joue un rôle important.

Nous définissons ce volume comme la zone du faisceau laser située dans le gaz, de part et d'autre du foyer de la lentille focalisatrice et délimitée par des sections de faisceau à travers lesquelles passe un flux de photons appelé flux seuil. Ce flux est celui pour lequel il y a, pendant le temps d'interaction, formation d'une charge électrique par ionisation du gaz. Il dépend de la nature du gaz et de l'énergie des photons incidents. On pourrait définir ce flux par :

$$1 = n_o\ K\ \phi_S^N\ v\ \tau$$

Ce flux dépend de la nature du phénomène, c'est à dire de N et de K. Nous allons montrer comment il serait possible de déterminer le volume d'interaction et la distribution du flux de photons de part et d'autre du foyer de la lentille focalisatrice.

Nous avons choisi un faisceau en forme de tronc de cône.



Pour une divergence θ et une distance focale f, le rayon de la tache focale au foyer de la lentille est :

$$a = f\ \theta$$

Le rayon d'une section d'abscisse x est :

$$R = \left(\frac{R_o - a}{f}\right) x + a \qquad 2.4.2(1)$$

Le flux est :

$$\phi = \frac{P(t)}{S} = \frac{P(t)}{\pi R^2} \qquad 2.4.2(2)$$

c'est une fonction du temps et de l'espace.

Le volume "focal" est délimité par les abscisses x_s et $-x_s$ où les sections du faisceau sont traversées par le flux seuil ϕ_s

$$\phi_s = \frac{P(t)}{\pi R_s^2} \qquad \text{avec} \qquad R_s = \left(\frac{R_o - a}{f}\right) x_s + a \qquad 2.4.2(3)$$

Ce volume est deux fois celui du tronc de cône délimité par les cercles de rayons a et R_s et de hauteur x_s.

$$V_{focal} = 2\pi \frac{x_s}{3} (R_s^2 + a^2 + aR_s) \qquad 2.4.2(4)$$

$$= f(\phi_s , P(t))$$

Nous avons calculé, en choisissant une loi de gauss pour l'évolution dans le temps de la puissance laser en accord avec la forme des impulsions mesurées :

$$P(t) = P_M e^{-at^2}$$

l'évolution du volume focal et la distribution de flux pour différentes puissances P_M du laser.

Les résultats sont donnés sur les courbes des figures 8 et 9.

La variation du volume focal est représentée en fonction de la section efficace d'ionisation multiphotonique.

On constate que la détermination d'un flux seuil de la manière dont nous l'avons défini s'avère très difficile et très arbitraire.

Pour les calculs numériques nous l'avons pris tel que

$$K \phi_s^{13} = 1$$

Le volume d'interaction, qui est relié à ϕ_s, dépend donc d'une part de l'ordre N du processus multiphotonique, d'autre part de la section efficace multiphotonique d'ionisation. Or nous nous proposons dans ce travail de déterminer ces deux grandeurs.

En toute rigueur, il n'est pas possible de définir un flux seuil et un volume d'interaction avant de vérifier si le processus est multiphotonique et avant de connaitre l'ordre N de ce processus.

C'est pourquoi, dans l'étude que nous faisons pour vérifier l'hypothèse multiphotonique nous nous sommes affranchis de la détermination du volume d'interaction.

Lorsque l'on décrit la courbe de résonance, augmenter la probabilité d'ionisation revient à abaisser le flux seuil. Le volume focal augmente alors et le nombre de charges créées dans le volume initial augmente aussi.

La mesure du nombre global de charges créées, bien que ne permettant pas dans un premier temps de déterminer l'ordre N du processus et la section efficace d'ionisation, nous permet, cependant, de vérifier par la mesure de la résonance l'hypothèse multiphotonique.

2.4.3 - Interprétation de l'expérience

Pour vérifier sur le néon la validité de l'hypothèse multiphotonique, il nous a suffi de faire passer l'énergie des photons du laser de 1,785 eV à 1,7858 eV.

Puisque le nombre de charges collectées est donné par la relation :

$$n_e = K(\omega)\, n_o\, \phi^N\, v\, t$$

une variation de n_e pour une pression de gaz constante et un flux de photons ϕ également constant, ne peut provenir que d'une variation de la section efficace K. Nous avons retrouvé expérimentalement, par la mesure du nombre de charges, le caractère résonnant de la probabilité d'ionisation mis théoriquement en évidence dans le chapitre 2 et provenant d'une coïncidence entre l'énergie d'un niveau de l'atome et l'énergie d'un nombre entier de photons. Cette expérience est interprétée à ce stade comme le résultat du couplage de 12 photons avec le niveau $11p[3/2]_{1,2}$, nous nous proposons de montrer que cette interprétation est justifiée.

Dans le tableau suivant, et sur la figure 10, nous avons représenté les niveaux du néon qui sont susceptibles de se coupler avec un harmonique de la fréquence laser.

Niveau	E cm^{-1}	Photons de 1,785 eV $h\nu_1$=14.400,5cm^{-2}	Photons de 1,7858 $h\nu_2$=14.406,94cm^{-1}	$\Delta E(cm^{-1})$
$4s[3/2]_{2,1}$	158.787,954	11hν=158.386,8	11hν=158.476,35	-401,59→-311,6
$11p[3/2]_{1,2}$	172.873,9	12hν=172.785,6	12hν=178.883,29	- 87,7 → 10
		12hν=172.785,6	12hν=178.883,29	-1.125,85→-1.048,4
Ionisation	173.931,7 {			
		13hν=187.184,4	13hν=187.290,24	13.274→13.358,5

ν_1 est la fréquence du laser à 20 °C. ν_2 est la fréquence du laser à la résonance. On aurait pu considérer le couplage de 11 photons avec le niveau 4s, mais sa contribution n'est pas prépondérante. En effet, la variation d'énergie des photons de $h\nu_1$ à $h\nu_2$ n'est pas suffisante pour modifier notablement la valeur de ce couplage.

Par contre, le couplage de 12 photons avec le niveau 11p est très sélectif. La même variation d'énergie des photons permet d'annuler ΔE et donc de faire apparaître la résonance. C'est bien ce couplage qui est prépondérant dans la probabilité d'ionisation.

En formant le produit 12hν à la résonance nous trouvons 21,4302 eV soit un écart de 72 10^{-5} eV par rapport au niveau 11p.

Remarque : Il existe entre le niveau 11p et le niveau d'ionisation un très grand nombre de niveaux d'énergie intermédiaire comprise entre 21,4294 eV (11p) et 21,559 eV (ionisation). La coïncidence avec le niveau 11p considéré comme un niveau isolé est en accord avec les règles de sélection : un nombre de photons ne peut interagir qu'avec un niveau de même parité. Si nous considérons les niveaux compris entre le 11p et le continu, il n'en existe aucun de pair ; donc 12 photons ne peuvent interagir qu'avec le niveau 11p.

En définitive, cette première approche nous permet de penser que le processus de photoïonisation se fait à 13 photons.

La relation 2.1 est bien vérifiée, nous avons :

$$13h\nu \geq 21{,}559 \text{ eV}$$

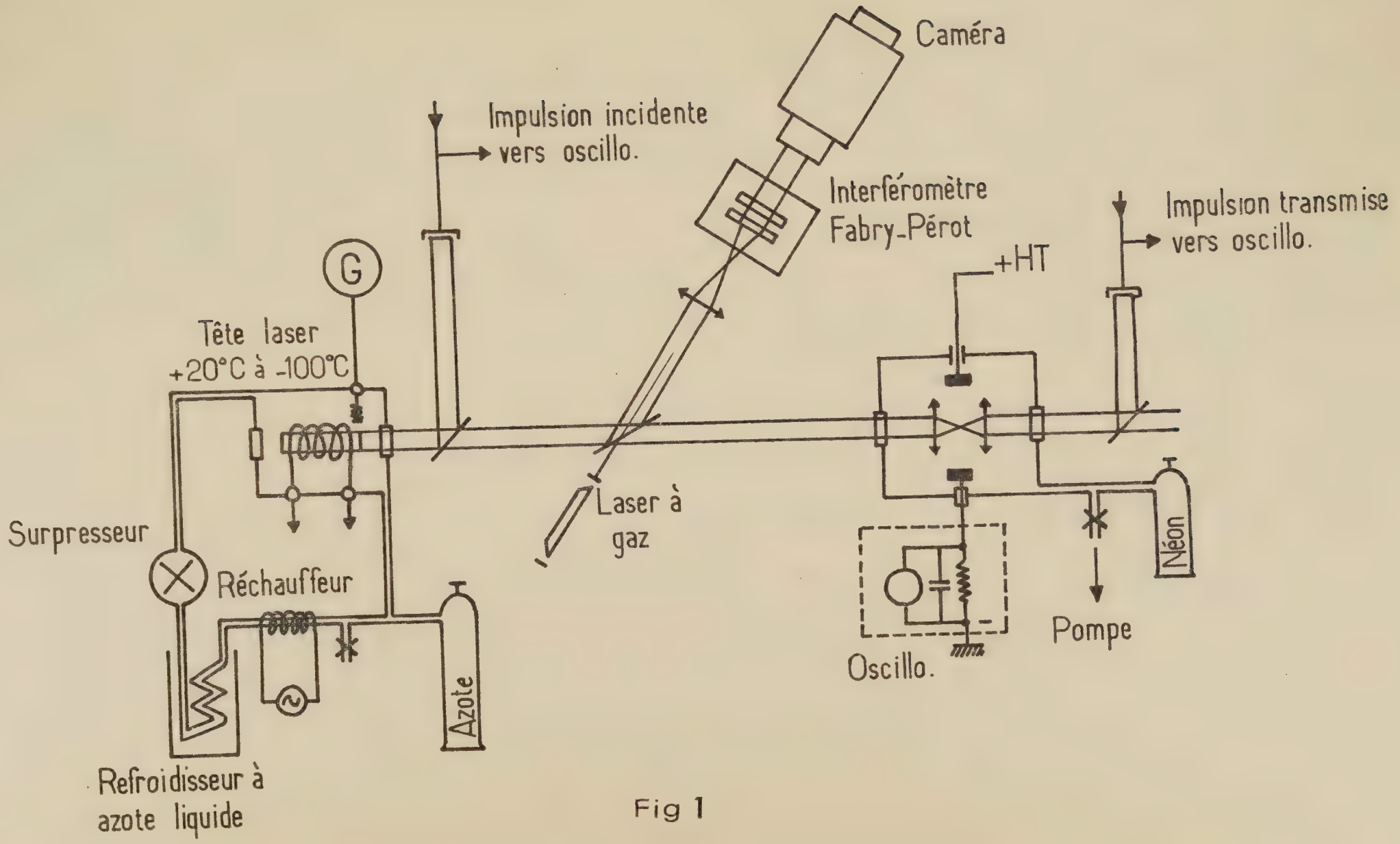

Caméra
Impulsion incidente
vers oscillo.
Interféromètre
Fabry-Pérot
Impulsion transmise
vers oscillo.
+HT
G
Tête laser
+20°C à -100°C
Surpresseur
Réchauffeur
Laser à
gaz
Néon
Pompe
Oscillo.
Azote
Refroidisseur à
azote liquide

Fig 1

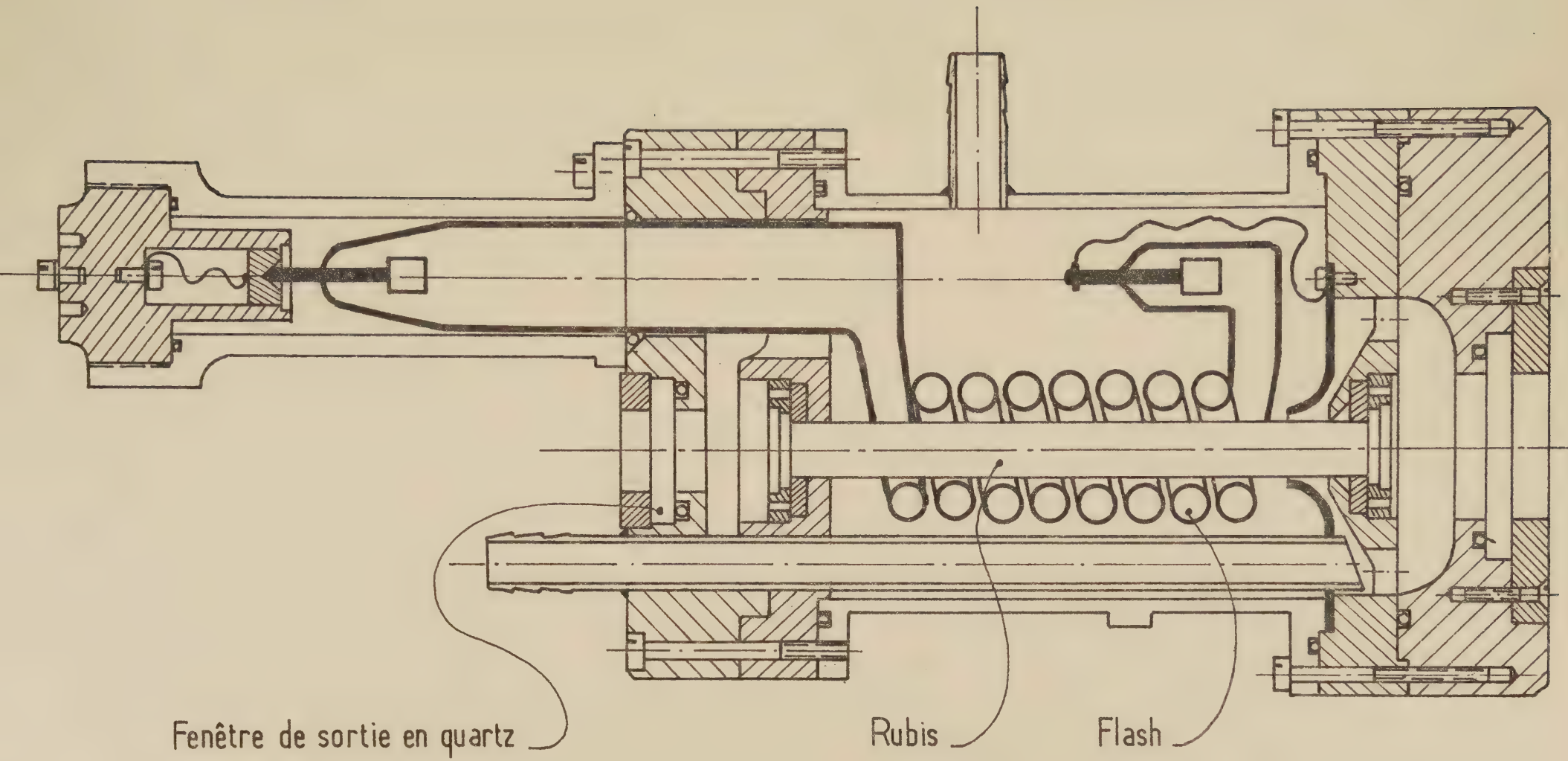
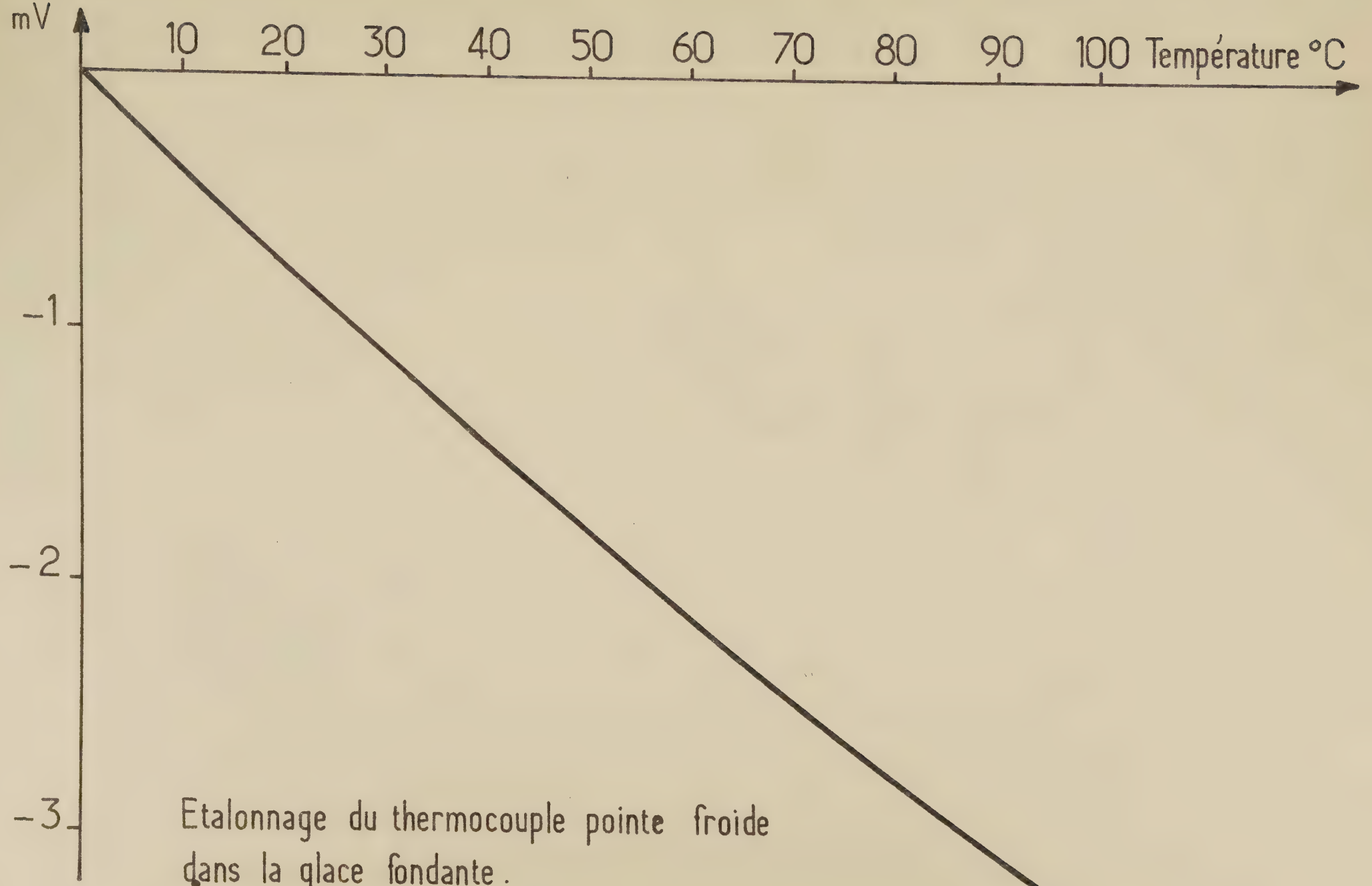


Fig 2



Etalonnage du thermocouple pointe froide dans la glace fondante.

Fig 3

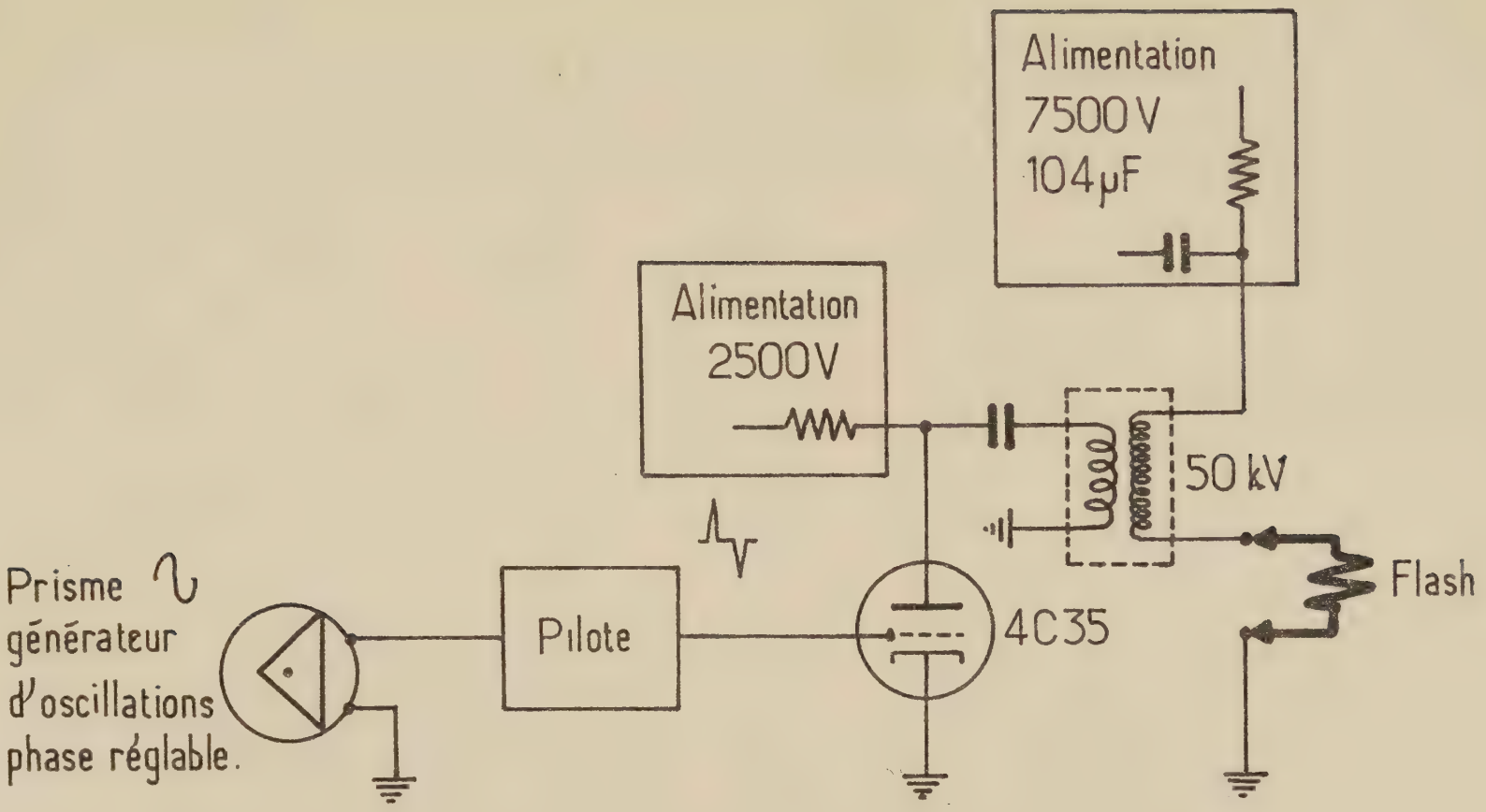


Fig. 4 _Schéma synoptique du dispositif électronique.

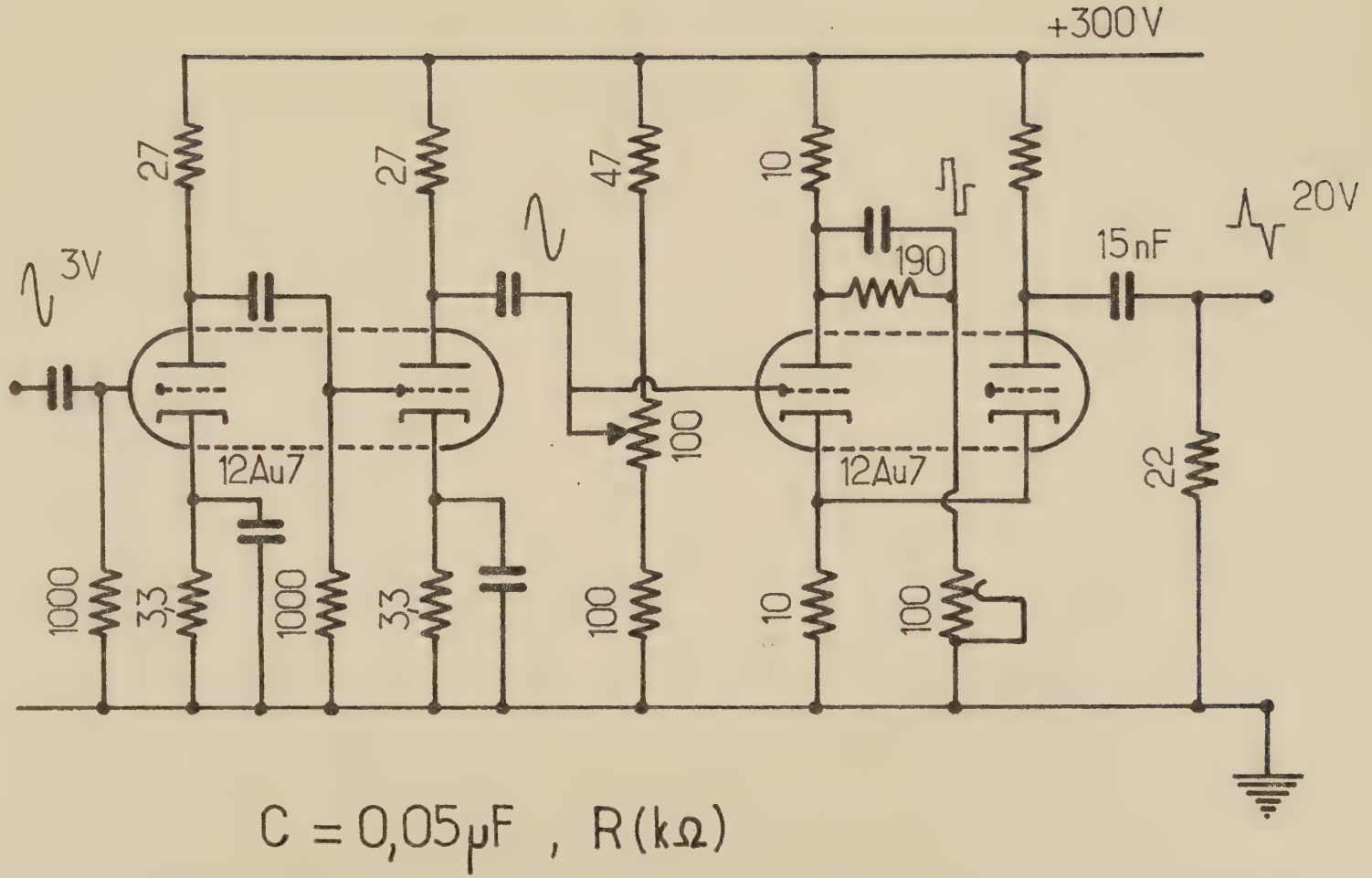
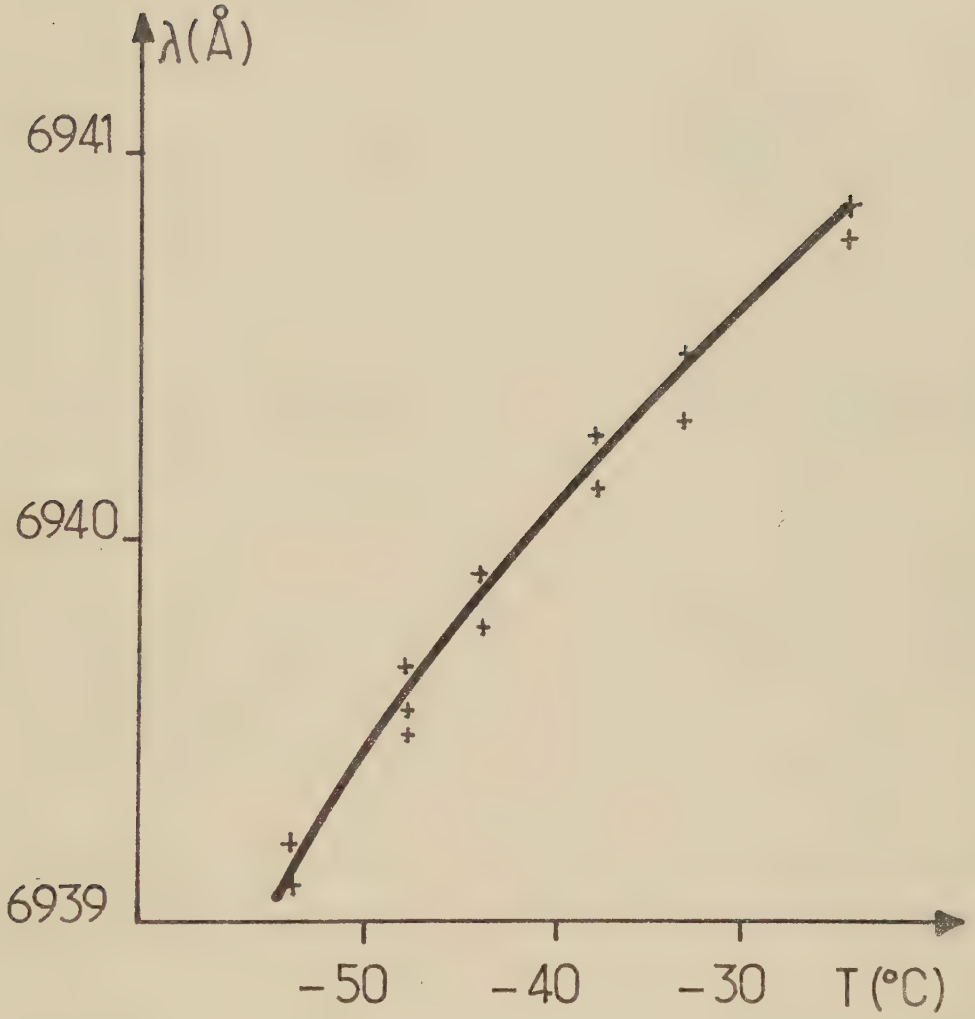
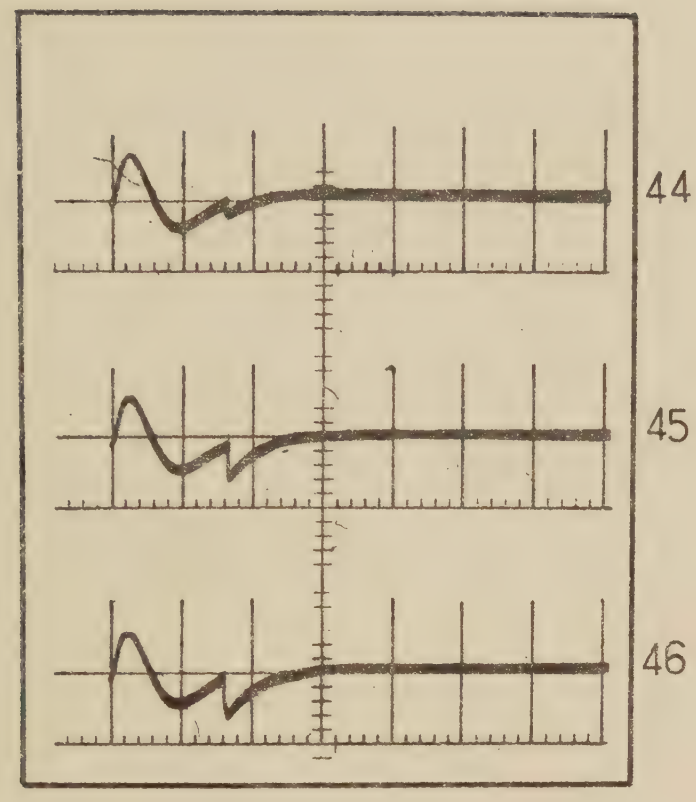


Fig. 5 - Schéma du pilote.

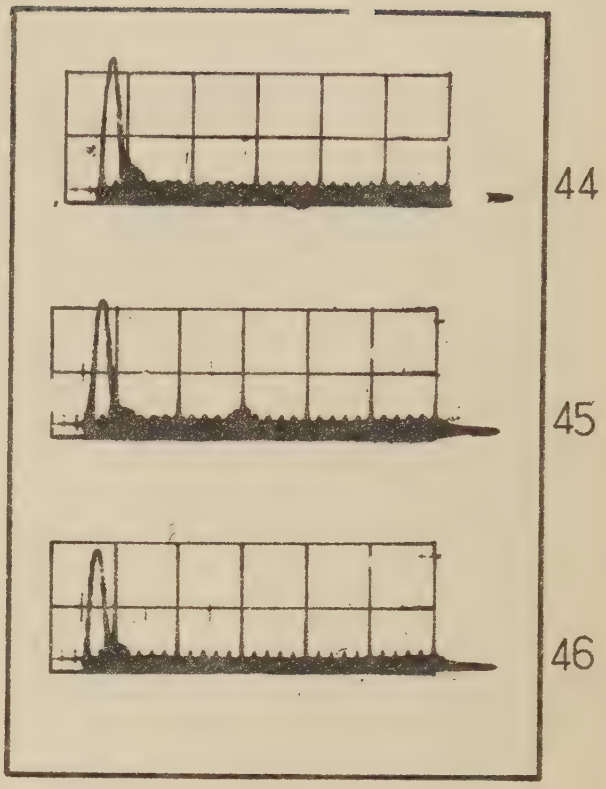


Courbe d'étalonnage du laser en longueur d'onde.

Fig 6

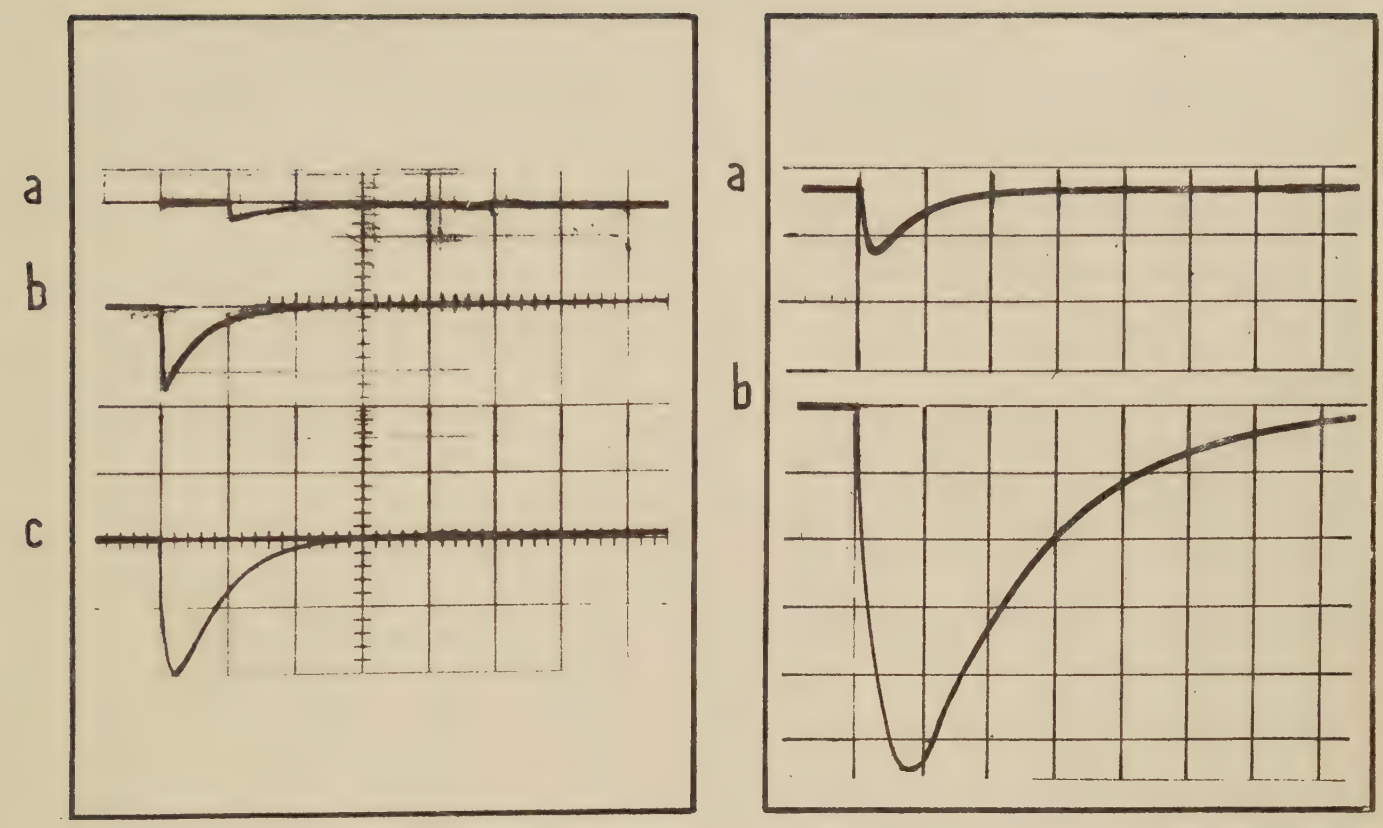


Ordonnée : 5 mV/division
Abscisse : 500 ms/division



Ordonnée : 2 MW/division
Abscisse : 200 ns/division

Planche. I _ Signaux de détection dans le néon avec impulsion laser correspondante.



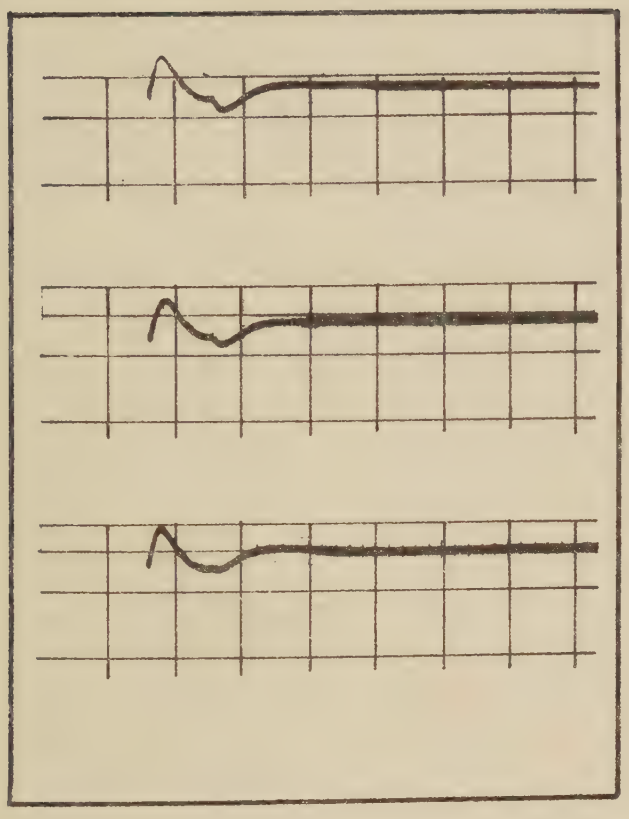
$\lambda = 10500\ \text{Å}$

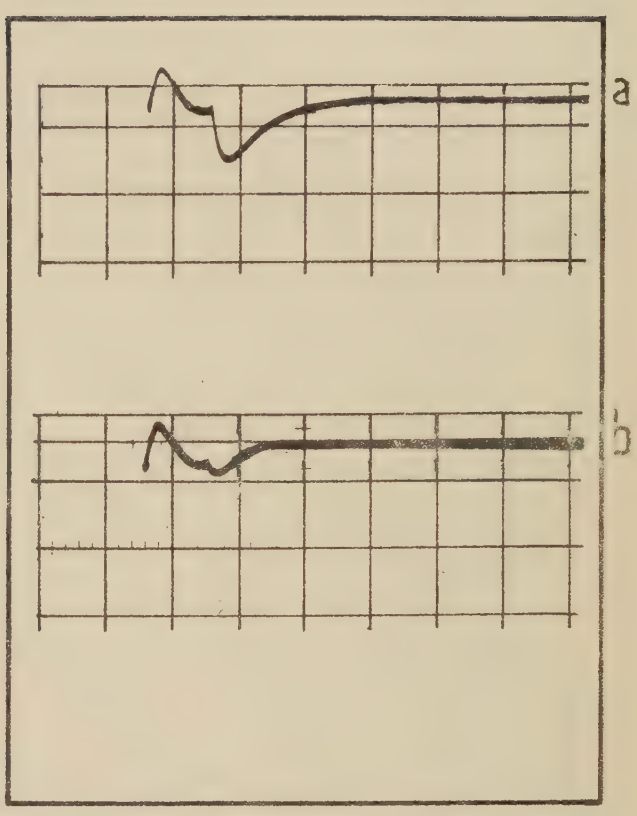
(1) (2)

Planche. II. Signaux de détection dans l'argon.
Tension de polarisation 5 kV.

(1) a et b : très faible pression.
c : $p = 12.10^{-3}$ Torr

(2) a et b : 12.10^{-3} Torr pour ≠ puissances du laser.





$\lambda = 10\,500$ Å

(1) (2)

Planche III_ Signaux de détection dans le krypton.
Tension de polarisation 3 kV.

Énergie à l'entrée de l'enceinte.

(1) a et b (2) b 3 joules
(2) a 3,6 joules
(1) c 2,7 joules

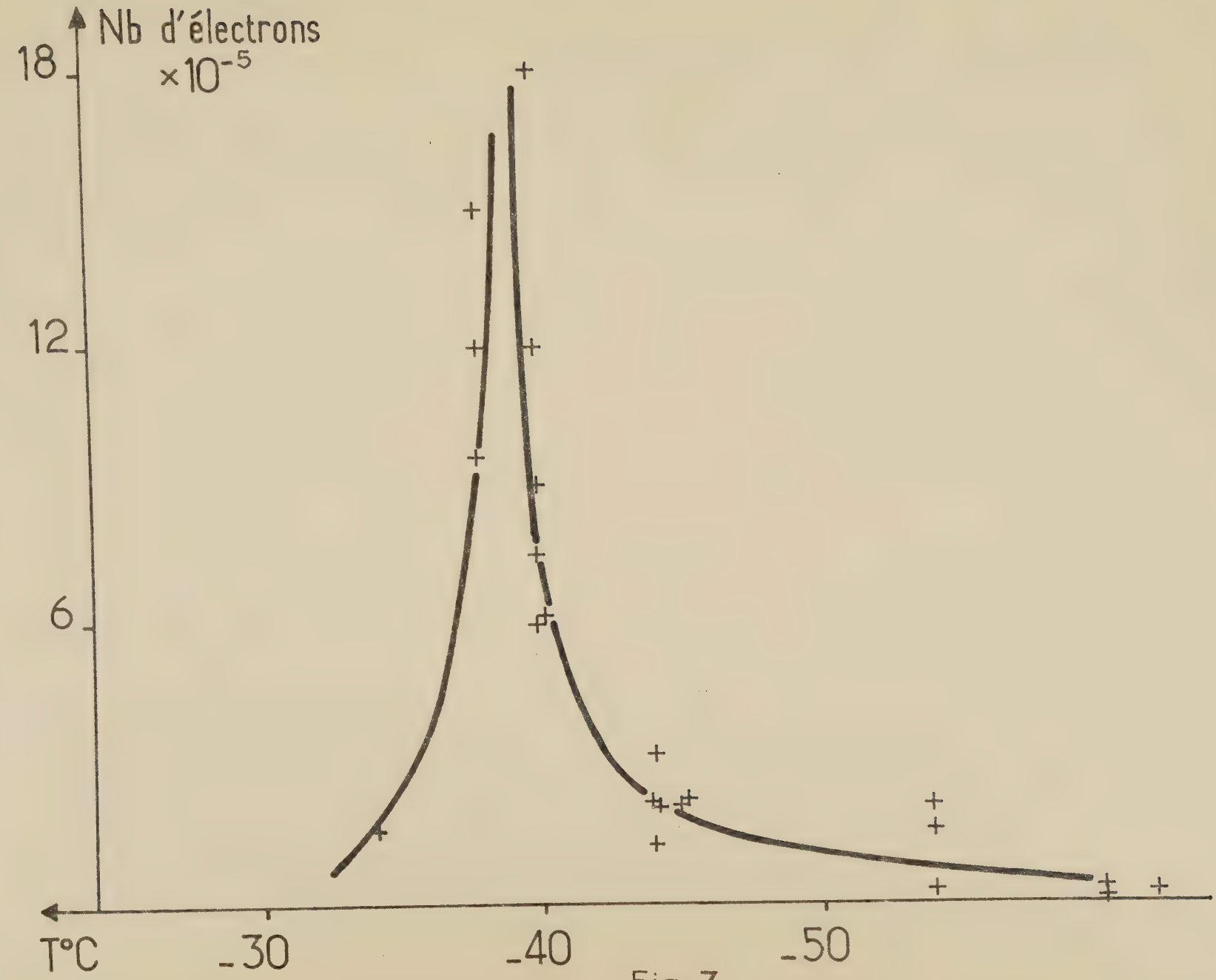
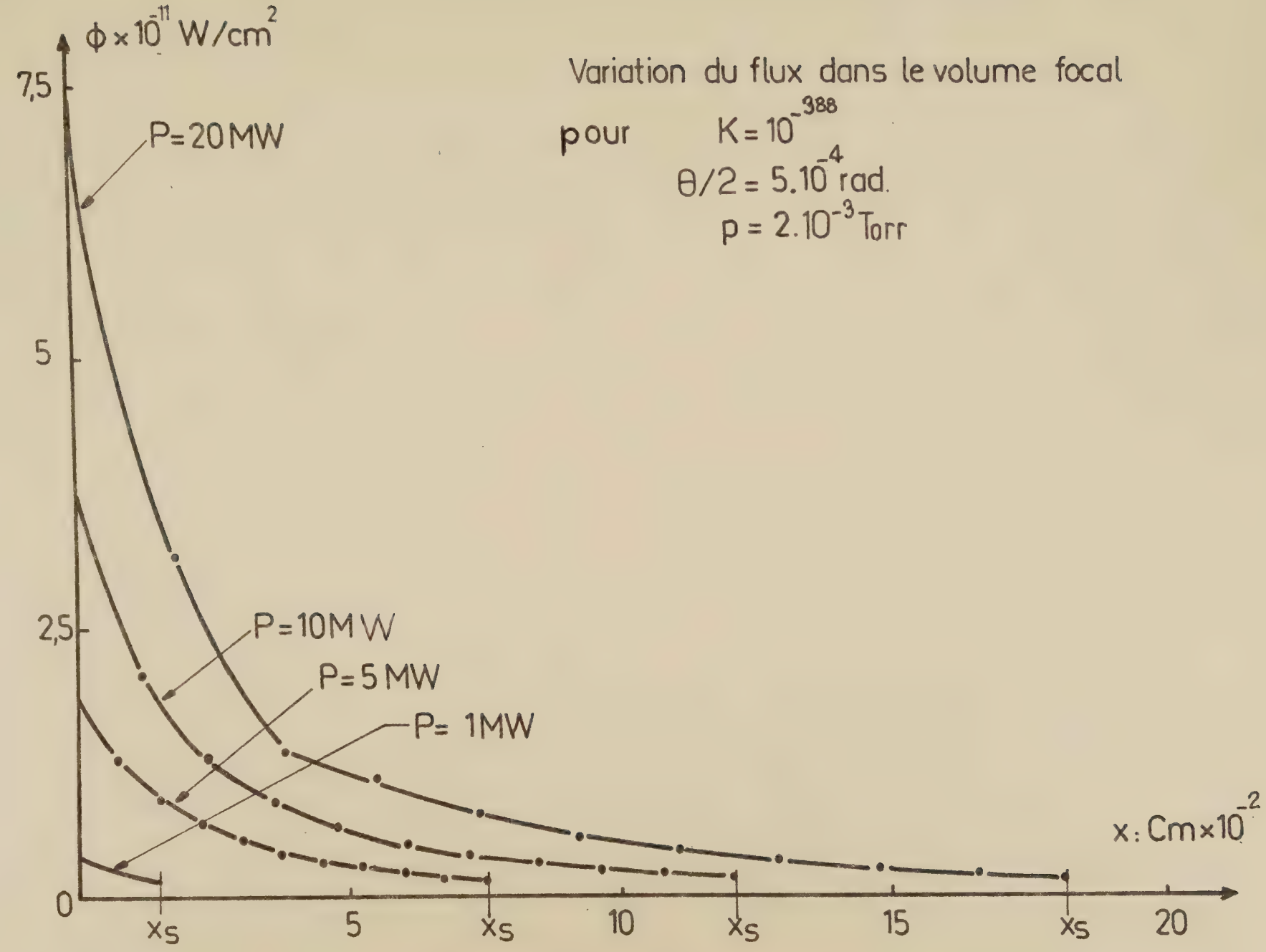


Fig 7



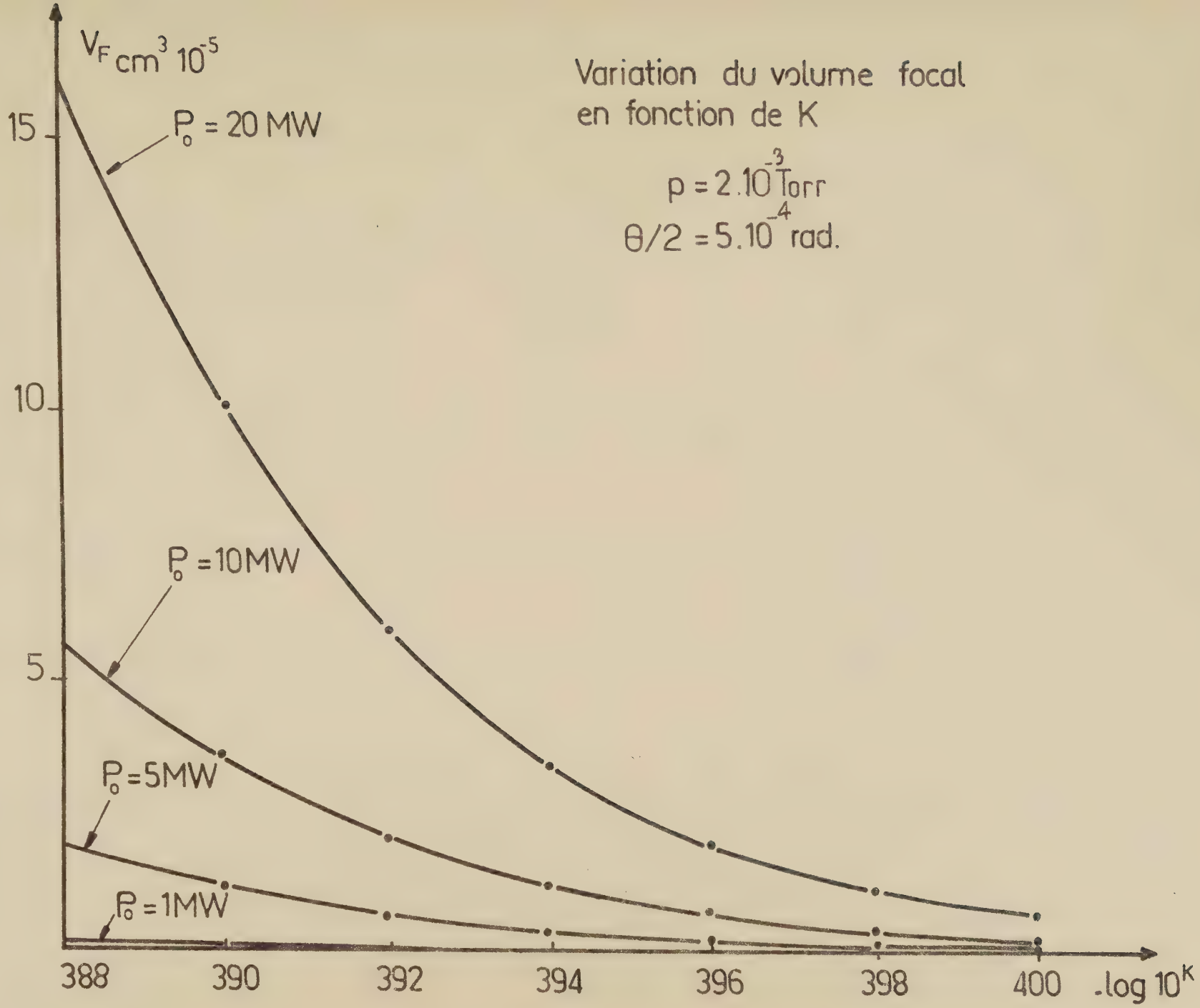
Variation du flux dans le volume focal

pour $K = 10^{-388}$

$\theta/2 = 5.10^{-4}$ rad.

$p = 2.10^{-3}$ Torr

Fig 8



Variation du volume focal
en fonction de K

$p = 2.10^{-3}$ Torr

$\theta/2 = 5.10^{-4}$ rad.

Fig 9

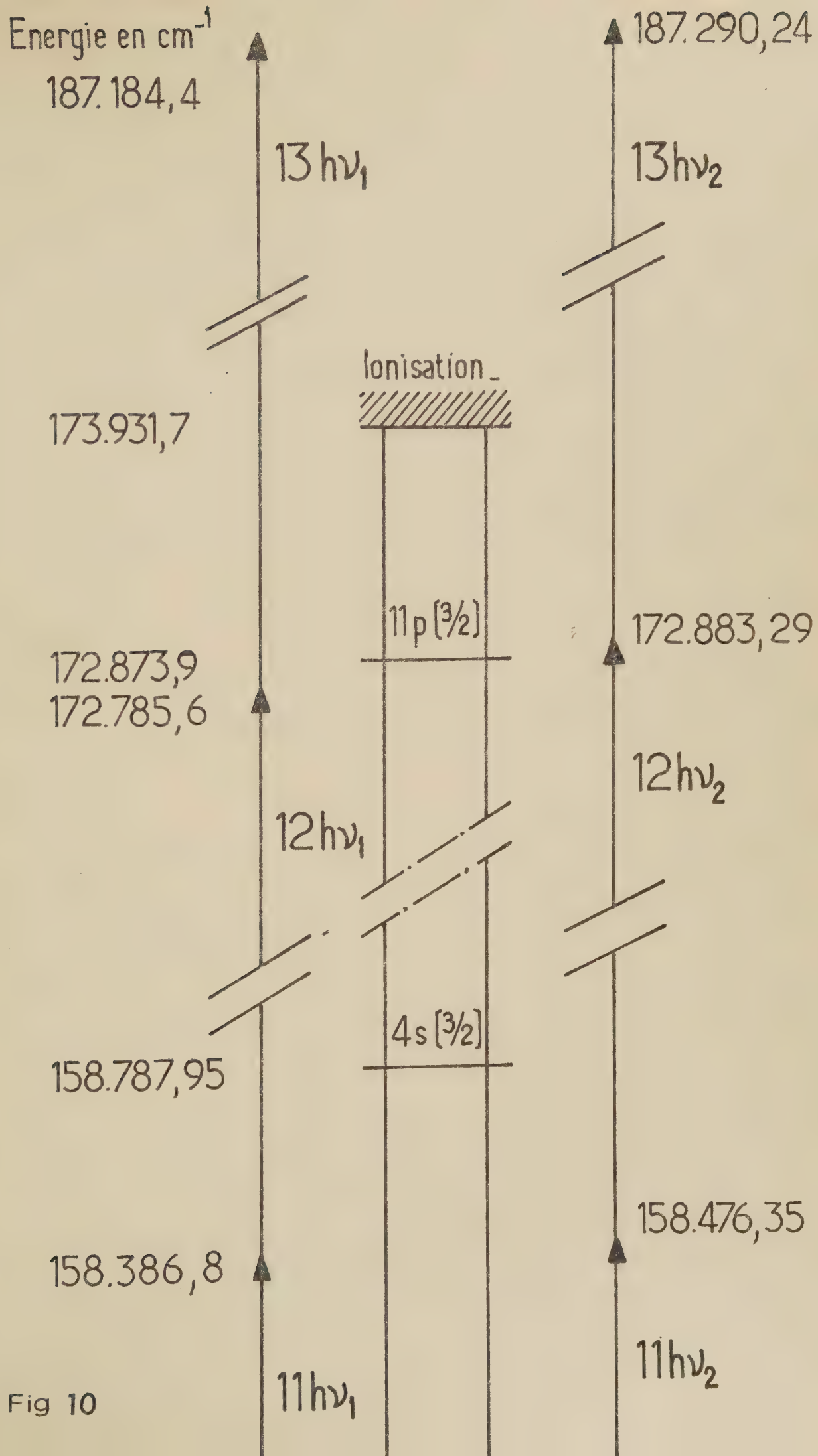

Energie en cm^{-1}
187.184,4
13 hν$_1$
187.290,24
13 hν$_2$
Ionisation
173.931,7
11 p [3/2]
172.883,29
172.873,9
172.785,6
12 hν$_1$
12 hν$_2$
4 s [3/2]
158.787,95
158.476,35
158.386,8
11 hν$_1$
11 hν$_2$

Fig 10

CHAPITRE 3

VALIDITE DE L'INTERPRETATION. ACTION DU CHAMP ELECTRIQUE DE L'ONDE

On peut décrire le processus multiphotonique de la manière suivante :

1 - Le niveau fondamental est perturbé par le rayonnement électromagnétique de l'onde. Pour obtenir l'ionisation cette perturbation se fait nécessairement à l'ordre N. L'électron optique se trouvant dans l'état fondamental évolue par une succession de transitions :

- chacune d'elle est virtuelle car elle ne conserve pas l'énergie ;
- la succession de toutes ces transitions donne une transition réelle chaque fois que l'électron optique, dans une transition d'ordre $\nu < N$ rencontre un niveau réel de l'atome, il y a excitation résonnante.

2 - Les autres niveaux de l'atome et en particulier les niveaux résonnants discrets et continu subissent la même perturbation. En conséquence, dans sa transition résonnante l'électron optique ne rencontre pas le niveau discret ou le continu dans leur état non perturbé, mais dans leurs états perturbés sous l'effet du rayonnement.

Les niveaux qui ne donnent pas de contribution résonnante à la probabilité d'ionisation ne jouent aucun rôle. Il n'est pas nécessaire de tenir compte de leur perturbation.

Dans leur théorie Bebb et Gold n'ont décrit que le point un de notre schéma général : chaque fois qu'ils ont trouvé un niveau résonnant ils l'ont considéré avec son énergie dans l'état non perturbé.

Les auteurs soviétiques [18] ont tenu compte dans leurs calculs théoriques de perturbations, des deux points cités ci-dessus : à savoir l'élargissement et le déplacement par effet Stark haute fréquence

des niveaux excités résonnants. Leur formalisme est classique, ils déterminent la probabilité d'ionisation d'un atome sous l'effet du champ électromagnétique intense de l'onde, dans le cas où la fréquence de l'onde laser est inférieure à la fréquence correspondant au potentiel du niveau résonnant considéré.

Pour que notre interprétation expérimentale soit correcte, il faut qu'elle rende compte des deux effets du processus multiphotonique que nous avons brièvement rapporté.

Dans cette optique, il nous est nécessaire de vérifier que la forte perturbation provoquée par l'onde lumineuse :

1 - ne fait pas disparaître le niveau $11p[3/2]_{1,2}$ dans le continu (perturbation sur le niveau d'ionisation) ;

2 - qu'elle laisse prévoir un déplacement de ce niveau, dans l'échelle des énergies, du même ordre que celui mesuré expérimentalement, soit 72.10^{-5} eV par rapport au niveau 11p non perturbé (perturbation sur le niveau discret).

Pour cela nous allons étudier tous les processus susceptibles de perturber les niveaux d'un atome par l'effet d'un champ électrique de fréquence optique et de forte intensité. La conclusion de cette discussion nous fournira une nouvelle configuration de l'ensemble des niveaux et nous permettra de fixer le nombre N de photons interagissant simultanément avec l'atome.

3.1 - Action du champ électrique de l'onde

Pour ioniser les gaz rares et en particulier le néon avec des photons d'énergie inférieure à l'énergie seuil, il est nécessaire d'irradier les atomes avec des flux intenses de photons. Dans notre cas, nous avons mesuré, à la traversée de la tache focale, des flux de l'ordre de 10^{30} photons par centimètre carré et par seconde, soit pour des photons de laser à rubis 10^{11} W/cm^2 environ.

Il correspond à ce flux un champ électrique efficace de 10^7 Volts par centimètre (exactement $10^{6,93}$ V/cm).

La relation :

$$E_{V.cm^{-1}} = 27,5\ (S\ w\ cm^{-2})^{1/2}$$

nous permet de calculer le champ électrique E correspondant à un flux donné S.

L'action du champ électrique intense de fréquence ω telle que $\hbar\omega << E_i$ peut donner lieu à une ionisation par l'intermédiaire de deux effets, l'un excluant l'autre, l'effet Tunnel ou l'effet multiphotonique.

3.1.1 - Effet Tunnel

Cet effet existe lorsque la période du champ électrique appliqué est suffisamment longue par rapport au temps de traversée de la barrière de potentiel par l'électron [18]. L'électron a, alors, le temps de traverser la barrière de potentiel et peut sortir du puits de potentiel de l'ion. Si ω est la fréquence du champ, cet effet se traduit par :

$$\omega << \omega_t$$

avec

$$\omega_t = \frac{eE}{\sqrt{2mE_i}}$$

où E est le champ électrique efficace.
E_i le potentiel d'ionisation de l'atome considéré.
e et m respectivement la charge et la masse de l'électron.

Une application numérique faite pour le champ électrique associé à l'onde focalisée émise par le laser à rubis et pour du Néon montre que :

$$\omega = \frac{2\pi E_\varphi}{h} = \frac{6,28 \times 1,785 \times 1,6\ 10^{-19}}{6,625\ 10^{-34}} = 2,7\ 10^{15}\ s^{-1}$$

avec E_φ énergie d'un photon.

ω_p pour un champ efficace E de 10^7 V.cm^{-1} prend la valeur :

$$\omega_p = \frac{eE}{(2mE_i)^{1/2}} = \frac{1,6\ 10^{-19}\ 10^9}{(2 \times 9,1\ 10^{-31} \times 21,559 \times 1,6\ 10^{-19})^{1/2}} = 6,38\ 10^{13} s^{-1}$$

et $\frac{\omega}{\omega t} = 42$

Nous pouvons conclure que pour le néon nous avons :

$\omega >> \omega t$

et que l'ionisation par effet tunnel n'est pas possible.

L'ionisation étant observée, nous considérons qu'elle est bien due à un effet à plusieurs quanta.

Bien que l'effet d'ionisation soit de type multiphotonique, les champs électriques nécessaires sont importants et de ce fait susceptibles de perturber les niveaux. Nous allons rappeler les différents effets du champ électrique sur un niveau atomique.

3.2 - Effet Stark linéaire

3.2.1 - Champ continu

Cet effet n'existe que pour l'hydrogène qui a ses états d'énergie dégénérés en ℓ (moment orbital angulaire). Il a aussi lieu pour les autres atomes lorsqu'ils se trouvent dans un état excité très proche

du "continu". Alors les écarts d'énergie entre les différents niveaux sont suffisamment petits pour que ces états soient considérés comme "pseudo-dégénérés".

Cet effet se traduit par une multiplication des niveaux (levée de la dégénérescence en ℓ) et par une action de déplacement d'autant plus importante que le niveau est de nombre quantique principal élevé et que l'amplitude du champ est plus élevée. Ainsi le déplacement du niveau dans l'échelle des énergies est :

$$\Delta(E_o) = eE_c\, a_o\, n^2 \qquad 3.2.1(1)$$

a_o est le rayon de la première orbite de Bohr de l'atome d'hydrogène.
n est le nombre quantique effectif du niveau considéré défini par :

$$n = \left(\frac{R}{\varepsilon}\right)^{1/2} \qquad 3.2.1(2)$$

où ε est l'énergie du niveau compté à partir du continu (ionisation).
R le potentiel d'ionisation de l'hydrogène $R = 109.737.3\ cm^{-1}$.

Les niveaux très excités étant très voisins en énergie, les déplacements d'énergie de ces niveaux sous l'action du champ électrique E_c ont pour effet un brouillage de ces niveaux avec pour conséquence un abaissement effectif du potentiel d'ionisation [26].

Pour un champ électrique continu de $10^7\ V.cm^{-1}$, l'abaissement du potentiel d'ionisation est tel qu'il est exclu de considérer un effet Stark sur un niveau tel que le 11p du néon. Ce niveau serait rejeté dans le continu et l'effet tunnel serait prépondérant.

Dans notre étude expérimentale, le champ électrique est de haute fréquence et les effets d'un tel champ dépendent du temps pendant lequel il est appliqué à l'atome et doivent être considérés comme suit :

3.2.2 - Champ électrique rapidement oscillant

- Action sur le niveau d'ionisation. L'électron, au lieu d'avoir une énergie nulle, a une énergie moyenne donnée par :

$$\delta\varepsilon = \frac{e^2E^2}{4m\omega^2} \qquad 3.2.2(1)$$

soit numériquement pour le champ de 10^7 V.cm^{-1} et pour la pulsation ω de l'onde : 2,7 10^{15} s^{-1}.

$$\delta = 6{,}03\ 10^{-3}\ \text{eV} = 48\ \text{cm}^{-1}$$

Cette valeur correspond à un abaissement du potentiel d'ionisation de l'atome.

- Action sur un état lié. Nous allons montrer, étant donné l'importance que revêtent pour nous les états liés "résonnants", comment cet effet intervient dans la théorie multiphotonique. Nous nous proposons, dans le cas d'une interaction résonnante, de résumer le procédé de calcul de Keldysh [18].

La probabilité d'ionisation en deux étapes se calcule en considérant la valeur des fonctions d'onde de l'électron dans l'état lié résonnant s et dans l'état libre, en présence d'un champ Ecosωt. Soient respectivement ψ_s et ψ_p ces deux fonctions d'onde.

Nous adoptons le formalisme quasi-statique car le temps moyen d'excitation par plusieurs quanta depuis l'état fondamental vers l'état résonnant ($\sim 10^{-5}$ s) et le temps d'ionisation à partir de l'état résonnant (10^{-10} s pour le niveau 11p, voir calcul numérique ci-après) sont toujours très supérieurs à la période du champ électrique (10^{-15} s).

Les deux fonctions d'onde sont :

$$\psi_p(\vec{r},t) = \exp\left\{\frac{i}{\hbar}\left[(\vec{p} + \frac{e\vec{E}}{\omega}\sin\omega t)\vec{r} - \int_0^t \frac{1}{2m}(\vec{p} + \frac{e\vec{E}}{\omega}\sin\omega\tau)^2\, d\tau\right]\right\} \qquad 3.2.2(2)$$

$$\psi_s(\vec{r},t) = \psi_s(\vec{r}) \exp\{\frac{i}{\hbar}(I_s t - \frac{eE}{\omega}\sigma_s \sin\omega t)\} \qquad 3.2.2(3)$$

où p représente le moment de l'électron libre.

I_s l'énergie potentielle du niveau S.

σ_s le coefficient de l'effet Stark linéaire, seul considéré pour l'instant.

Remarque : Il est correct de faire intervenir un effet Stark linéaire car nous prenons comme niveau s le niveau 11p du néon qui est pseudo dégénéré.

La probabilité d'ionisation en deux étapes se calcule simplement à partir des formules de la théorie de perturbation à l'ordre deux.

L'élément de matrice pour la transition du fondamental (0) vers l'ionisation (p) via l'état résonnant (s) est [18] :

$$\langle p|V_{po}^{(2)}|0\rangle = \frac{1}{\hbar^2}\sum_s \iint V_{sp}(\vec{p} + \frac{e\vec{E}}{\omega}\sin\omega t)\cos\omega t.\exp\{\frac{i}{\hbar}\int_0^t [I_s - eE\sigma_s\cos\omega\tau + \frac{1}{2m}(\vec{p} + \frac{e\vec{E}}{\omega}\sin\omega\tau)^2]d\tau\}\times V_{os}\cos\omega t'\exp\{\frac{i}{\hbar}\int_0^{t'}[I_o - I_s + eE\sigma_s\cos\omega\tau]d\tau\}dt'dt$$

$$\text{où } V_{sp}(\vec{p}) = \int \exp^{-\frac{i}{\hbar}\vec{p}.\vec{r}}\, e\vec{E}\vec{r}\, \exp^{-\frac{r}{a_o}}\, \frac{d^3r}{(\pi a_o^3)^{1/2}} \qquad 3.2.2(4)$$

$$V_{os} = \int \psi_s^{*}(\vec{r})\, e\vec{E}\vec{r}\, \psi_o(\vec{r})\, d^3r$$

Après avoir calculé la probabilité de transition par unité de temps, soit :

$$\frac{d}{dt} |\langle p|V_{po}^{(2)}|o\rangle|^2$$

et développé les expressions du type

$$V(\vec{p} + \frac{eE}{\omega} \sin\omega t)\exp\{\frac{i}{\hbar}\int_o^t [I_s - eE\sigma_s\,\omega\tau + \frac{1}{2m}(\vec{p} + \frac{e\vec{E}}{\omega}\sin\omega\tau)^2]d\tau\}$$

en série de Fourier, on trouve pour la probabilité du processus résonnant par unité de temps :

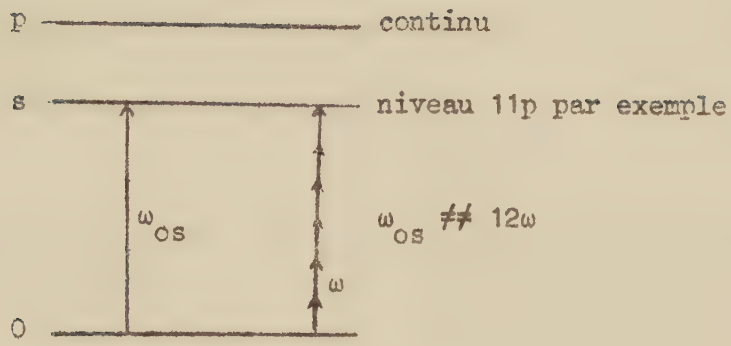
$$w^{(r)} = \frac{1}{4}\sum_s |J_{n_s+1}(\frac{eE\sigma_s}{\hbar\omega}) + J_{n_s-1}(\frac{eE\sigma_s}{\hbar\omega})|^2 . \frac{|V_{os}|^2 w_s}{(I_o - I_s + n_s\hbar\omega)^2 + \hbar^2 w_s^2} \qquad 3.2.2(5)$$

où w_s représente la probabilité d'ionisation du niveau excité (s). On remarque que l'introduction dans les calculs de l'effet Stark linéaire se traduit par un terme de pondération sous forme de fonctions de Bessel et que la condition

$$I_o - I_s = n_s\hbar\omega$$

traduit la résonance. Dans l'expression 3.2.2(5) il a été rajouté au dénominateur le terme de largeur de niveau $\hbar w_s$ qui évite une amplitude infinie pour cette résonance.

Remarque : Le calcul précédent est similaire au calcul de l'effet Stark linéaire en haute fréquence dans le cas de l'approximation quasi-statique [27] soit pour la condition : $\omega << \omega_{os}$



L'effet Stark oscillant se calcule en considérant en première approximation l'atome formé de deux niveaux et en remarquant que les deux états sont couplés par l'intermédiaire du terme temporel (dû au champ $E\cos\omega t$) de l'Hamiltonien perturbé.

Ce couplage a pour effet de créer un état "mixte" OS ayant une fonction d'onde dépendant du temps. Une décomposition de Fourier de la partie temporelle de la fonction d'onde de l'état mixte (calcul analogue à celui exposé ci-dessus) permet d'obtenir un "spectre" de plusieurs composantes.

On montre que, pour l'effet Stark dû à un champ oscillant de fréquence telle que $\omega << \omega_{os}$ le couplage au premier ordre de l'état mixte donne chaque composante du"spectre" séparée de ω, la $n^{ième}$ composante étant déplacée par rapport à l'état initial O de $n\omega$, l'intensité de ces composantes est pondérée par la fonction de Bessel d'ordre n

$$J_n^2 \left(\frac{cE\sigma_s}{\hbar\omega}\right)$$

résultat similaire à 3.2.2(5)

3.3 - Effet Stark quadratique

Si nous tenons compte de cet effet, l'opérateur d'évolution devient :

$$\exp\left\{\frac{i}{\hbar}\int_0^{t'}\left[I_o - I_s + eE\sigma_s \cos\omega\tau + e^2\alpha_s E^2\cos^2\omega\tau\right]d\tau\right\}$$

où $e^2\alpha_s E^2\cos^2\omega\tau$ est le terme d'effet Stark quadratique.

Ce terme peut encore se mettre sous la forme :

$$e^2 \frac{1}{2} \alpha_s E^2 + \frac{1}{2} e^2 \alpha_s E^2 \cos 2\omega\tau$$

Si nous reprenons le calcul précédent de la probabilité d'ionisation nous obtenons au dénominateur de la relation 3.2.2(5) le terme indépendant du temps $\frac{1}{2} e^2 \alpha_s E^2$ et les termes I_o et I_s.

Le terme oscillant $\frac{1}{2} e^2 \alpha_s E^2 \cos^2 \omega t$ se retrouve comme le terme d'effet Stark linéaire dans l'argument de la fonction de Bessel. Un calcul d'ordre de grandeur montre qu'il est négligeable en comparaison du terme linéaire $eE\sigma_s \cos\omega\tau$.

La condition de résonance prend alors compte tenu des considérations précédentes la forme :

$$I_o - I_s + \frac{1}{2} e^2 \alpha_s E^2 = n_s \hbar\omega$$

Elle met en évidence un déplacement du niveau (s) vers le continu de la quantité $\frac{1}{2} e^2 \alpha_s E^2$. Il s'en suit que la résonance a lieu pour une énergie de photons $\hbar\omega$ plus importante que celle prévue par la théorie élémentaire.

Remarque : Si l'on continue le calcul de l'effet Stark haute fréquence décrit précédemment à l'ordre 2, on obtient l'effet Stark quadratique. On trouve une nouvelle décomposition du système en série de Fourier. Les composantes du spectre sont déplacées par rapport à la position non perturbée du niveau de la quantité

$$\frac{e^2}{2} \alpha_s E^2 \pm 2n\omega$$

Leurs intensités sont pondérées par des termes en

$$J_n^2 \left(\frac{e^2 \alpha_s}{2} E^2\right)$$

Nous pouvons résumer ces quelques données sur l'effet Stark en notant que la composante d'ordre zéro d'effet Stark linéaire n'est pas déplacée, tandis que celle d'ordre zéro d'effet Stark quadratique est déplacée de $\frac{1}{2} e^2 \alpha_s E^2$.

3.4 - Elargissement du niveau "résonnant"

En l'absence de perturbation, un niveau discret possède une largeur naturelle γ_s. Il doit donc en toute rigueur exister au dénominateur de la formule 3.2.2(5) un terme $\hbar^2 \gamma_s^2$ et grâce à ce terme la probabilité d'ionisation n'est pas infinie à la résonance, ce qui est physiquement "acceptable" et en accord avec l'expérience.

Sous l'influence d'un flux de photons, un atome excité a la possibilité de se photoioniser directement si la condition suivante est réalisée

$$I_s \leq \hbar\omega \qquad 3.4(1)$$

avec I_s potentiel d'ionisation de l'atome excité sur le niveau s.
$\hbar\omega$ énergie d'un photon.

La probabilité d'ionisation du niveau est alors formellement :

$$w_s = \sigma_s' \phi \qquad 3.4(2)$$

où σ_s' est la section efficace de photoionisation de l'atome excité dans le niveau s,
et ϕ le flux de photons exprimé par un nombre par $cm^2 \times sec^{-1}$.
w_s a la dimension d'une fréquence (sec^{-1}).

La photoionisation à partir du niveau considéré a pour effet de diminuer le temps de vie de ce niveau et lui confère une largeur Γ_s supérieure à sa largeur naturelle

$$\Gamma_s = \hbar w_s \qquad 3.4(3)$$

Un calcul d'ordre de grandeur montre que $\hbar\gamma_s$ est beaucoup plus petit que Γ_s, ce dernier terme sera donc négligé dans le relation fondamentale 3.2.2(5).

En conclusion, nous avons montré qu'un niveau s et en particulier le niveau 11p du néon subit de la part du champ électrique oscillant, un déplacement $\frac{1}{2} e^2 E^2 \alpha_s$ et dans le cas d'une photoionisation un élargissement Γ_s. Il convient maintenant de calculer dans notre cas précis ces grandeurs.

3.5 - Déplacement Stark dans nos conditions d'expérience

3.5.1 - Calcul du déplacement

L'effet Stark en haute fréquence s'écrit pour un niveau n donné [17] [28]

$$\Delta E_n = - \frac{1}{2} \alpha_n(\omega) E^2 \qquad 3.5.1(1)$$

où $\alpha_n(\omega)$ est la polarisabilité du niveau. Ce terme peut se mettre sous la forme

$$\alpha_n(\omega) = \sum_m |\langle n|Z|m\rangle|^2 \left\{\frac{1}{\omega_{nm} + \omega} + \frac{1}{\omega_{nm} - \omega}\right\} \qquad 3.5.1(2)$$

où Z est le moment dipolaire électrique pour la transition $n \to m$.

ω_{nm} l'écart d'énergie entre les niveaux n et m.

ω l'énergie des photons de l'onde.

Cette relation est définie loin de la résonance : $\omega \neq \omega_{nm}$.

La relation 3.5.1(2) montre que le calcul de la polarisabilité demande la contribution de tous les niveaux m susceptibles de donner une transition n → m permise par les règles de sélection, c'est à dire telle que le moment dipolaire électrique soit différent de zéro.

Remarque : On peut montrer que pour des valeurs de $\hbar\omega \gtrsim \hbar\omega_{nm}$ [27] la relation 3.5.1(2) devient [29]

$$\Delta E_n = \frac{\hbar\omega - E_m + E_n}{2}\left(\sqrt{1 + \frac{16\pi |D_{nm}|^2 (E_m - E_n)\Phi\hbar\omega}{[\hbar^2\omega^2 - (E_m - E_n)^2](\hbar\omega - E_m + E_n)C}} - 1\right) \qquad 3.5.1(3)$$

L'effet Stark quadratique se transforme en effet linéaire et seul le niveau quasi résonnant, c'est à dire celui pour lequel $\omega \gtrsim \omega_{nm}$ donne une contribution importante.

C : vitesse de la lumière

Φ est le flux de photons incidents en $cm^{-2}s^{-1}$

$E_m - E_n = \omega_{nm}$

$|D_{nm}|^2 = |\langle n|Z|m\rangle|^2$ est le moment dipolaire pour la transition n → m exprimé en unités atomiques ($a_o^2 e^2 = 6{,}457\ 10^{-36} cm^2 ues^2$).

La relation 3.5.1(2) n'est autre, à un coefficient près, que la section efficace de diffusion élastique d'un photon par un électron lié de l'atome dans l'état E_n [30] [31] [32].

La difficulté dans le calcul de $\alpha_n(\omega)$ est la connaissance des éléments dipolaires pour les transitions n → m.

En général, pour les transitions donnant des raies dans le visible ces valeurs sont tabulées [33]. Mais pour un niveau tel que le 11p du néon dont les niveaux les plus proches $10d[5/2]^o_3$ et $11d[1/2]^o_{0,1}$ sont à quelques dizaines de cm^{-1}, il est difficile de déterminer les valeurs des moments dipolaires. Dans le calcul de $\alpha(\omega)$ les transitions les plus proches 11p → 11d et 11p → 10d donnent les contributions prépondérantes. Les moments dipolaires pour ces transitions sont très grands étant donné le faible écart en énergie entre ces niveaux. On peut les déterminer lorsqu'ils ne sont pas tabulés par la méthode de Bates et

Daamgard [34]. On trouve des valeurs de $|D_o^2|_{nm}$ de l'ordre de 10^4 unités $a_o^2 e^2$ (voir Appendice).

Dans la relation 3.5.1(2) la sommation appliquée aux niveaux 11d et 10d donne une différence de deux termes de valeur élevée étant donnée la valeur très grande des moments dipolaires. Il s'en suit que toute erreur provenant du calcul des D_{nm} peut entrainer une valeur très importante pour $\alpha(\omega)$. Or, dans le cas où $\hbar\omega >> \hbar\omega_{nm}$ et où la longueur d'onde λ_o de la lumière incidente est beaucoup plus grande que les dimensions de l'atome, Heitler a montré [32 p.192] que la section efficace de diffusion d'un photon par un électron lié se réduit à la formule classique décrivant la diffusion d'un photon par un électron libre, soit :

$$\theta = \frac{2\pi r_o^2}{3} = 6{,}65\ 10^{-25}\ cm^2$$

ce qui correspond à un déplacement de $0{,}14.10^{-5}\ cm^{-1}$.

Dans ce cas l'effet Stark est négligeable.

3.5.2 - Détermination de la polarisabilité du niveau 11p

Nous avons mesuré expérimentalement un déplacement de la résonance multiphotonique par rapport à la résonance théorique de $6\ cm^{-1}$ vers le violet. Nous pensons que ce déplacement représente l'effet Stark quadratique sur le niveau 11p. Nous nous trouvons donc dans le cas où la diffusion élastique du photon par l'électron lié dans l'état 11p, tout en étant très faible, est plus importante qu'une diffusion de photon par un électron libre. Nous pouvons déterminer la polarisabilité du niveau 11p du néon pour la fréquence d'un laser à rubis ($h\nu = 1{,}785$ eV)

$$\Delta E_n = \frac{1}{2}\alpha(\omega)\ E^2 = \frac{2\pi\alpha(\omega)}{C}\ \phi$$

Pour un flux ϕ de $10^{11}\ W/cm^2$ et $\Delta E_n = 6\ cm^{-1}$ on obtient pour $\alpha(\omega)$

$$\alpha(\omega)_{11p} = \frac{C\Delta E_n}{2\pi\phi} = 5{,}685.10^{-24}\ cm^{+3}$$

Dans cette relation ΔE_n est exprimé en joules, C en cm/s et ϕ en W/cm^2.

Remarque : La polarisabilité du niveau fondamental du néon vaut : $3,5\ 10^{-25}\ cm^{+3}$ [35].

3.6 - Calcul de la largeur Γ_s du niveau 11p

La section efficace de photoionisation est donnée par la relation ci-dessous [36], l'atome dans le niveau 11p pouvant être considéré comme hydrogénoïde

$$\sigma'_{o,i} \text{ (cm}^2\text{)} = \frac{C_1 Z^4}{\nu^3 n_{eff}^5} \qquad 3.6(1)$$

avec $n_{eff} = \left(\frac{ZR}{\varepsilon}\right)^{1/2}$ voir formule 3.2.1(2)

La relation 3.6(1) est valable pour $\nu \geq \nu_i^s$ où ν_i^s est la fréquence seuil d'ionisation du niveau s. La valeur du coefficient C_1 est $C_1 = 2,815\ 10^{29}$ en CGS.

La fréquence du laser est $\nu = 4,31.10^{14}\ s^{-1}$

Pour le niveau $11p[3/2]_{1,2}$ du néon qui se trouve à $1057,8\ cm^{-1}$ du "continu"

$$n_{eff} = \left(\frac{109.737}{1057,8}\right)^{1/2} = 10,185$$

$$\sigma'_{11p \to i} = \frac{2,8\ 10^{29}}{80,06.10^{42} \times 1,096.10^{5}} = 3,2\ 10^{-20}\ cm^2$$

La probabilité d'ioniser ce niveau par un flux de photons ϕ de $10^{30}\ cm^{-2}s^{-1}$ est alors :

$$w = \sigma^{1}\phi = 3{,}20\ 10^{10}\ s^{-1}$$

L'élargissement correspondant Γ_s en cm^{-1} est

$$\Gamma_s = \frac{h\sigma^{1}\phi}{e}\ 8067{,}5 = 0{,}068\ cm^{-1}$$

(1 eV = 8067,5 cm^{-1}).

Ce calcul montre que la largeur du niveau 11p n'est pas très affectée par le champ électrique, ceci est dû au fait que $\nu >> \nu_s$. La section efficace de photoionisation a alors une valeur très faible.

3.7 - Conclusion : Conditions d'existence du niveau 11p.

A la différence de l'équipe soviétique [37] qui étudie les phénomènes d'ionisation, nous n'avons pas trouvé de différence de plus d'une unité dans l'ordre N d'effet multiphotonique par rapport à sa valeur théorique pour les raisons suivantes :

1°) La largeur de la raie du laser est inférieure à l'écart moyen entre deux niveaux dans la zone de résonance.

La largeur moyenne de notre raie laser déterminée comme l'écart entre les modes extrêmes émis par le laser (voir chapitre 4) est de quelques 10^{-1} cm^{-1}. Elle est bien plus petite que l'écart ω_{nm} entre le niveau 11p et les niveaux 10 et 11d.

$$\left.\begin{array}{l} 10d[5/2]^{o}_{3} = 172.832{,}24\ cm^{-1} \\ 11p[3/2]_{1,2} = 172.873{,}9\ cm^{-1} \end{array}\right\}\ \omega_{nm} = 46{,}66\ cm^{-1}$$

$$\left.\begin{array}{l} 11p[3/2]_{1,2} = 172.873{,}9\ cm^{-1} \\ 11d[1/2]_{0,1} = 173.019\ cm^{-1} \end{array}\right\}\ \omega_{nm} = 145{,}1\ cm^{-1}$$

$$\Gamma_{laser} = 12\ .\ 0{,}2 = 2{,}4\ cm^{-1}.$$

Γ_{laser} est la largeur de raie du 12ème harmonique du laser.

2°) Les fréquences correspondant aux transitions prépondérantes pour le calcul de la polarisabilité du niveau 11p sont beaucoup plus faibles que la fréquence du rayonnement laser. La polarisabilité $\alpha_{11p}(\omega)$ est alors très faible. Le déplacement Stark correspondant est aussi très faible

$$\omega_{nm} \ll \hbar\omega$$

$$\omega_{11p\to10d} = 41{,}66 \text{ cm}^{-1} \ll \hbar\omega = 14.400 \text{ cm}^{-1}$$

$$\omega_{11p\to11d} = 145{,}1 \text{ cm}^{-1} \ll \hbar\omega = 14.400 \text{ cm}^{-1}$$

3°) Le niveau 11p(172.874 cm^{-1}) et le niveau d'ionisation (173.931,7 cm^{-1}) sont distants de 1.057 cm^{-1}. Cet écart d'énergie est beaucoup plus faible que l'énergie d'un photon émis par le laser, soit 14.400 cm^{-1} ; l'élargissement résultant est donc faible.

Remarque : Le niveau 4s du néon est susceptible de se coupler dans de bonnes conditions avec la raie du laser pour la transition 4s → 4p où :

$$\omega_{4s\to4p} = 4.252 \text{ cm}^{-1} \lesssim 14.400 \text{ cm}^{-1}$$

La relation 3.5.1(3) donne pour un flux de photons de 10^{30} $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$

$$\Delta E = 167{,}8 \text{ cm}^{-1}$$

Le 11ème harmonique du laser se trouve à 300 cm^{-1} au dessous du niveau 4s. L'action du champ électrique, en considérant la transition 4s→4p dont le moment dipolaire est 38,7 $a_o^2 e^2$ donne un déplacement du niveau de 167,8 cm^{-1} vers le violet. Elle accroît le désaccord par rapport à une résonance avec ce niveau. Il est impossible de décrire une résonance multiphotonique sur le niveau 4s dans nos conditions d'expérience.

Nous avons, pour les autres gaz, des niveaux résonnants qui sont susceptibles de subir une forte influence du champ électrique étant donné les transitions dominantes qui peuvent se produire à partir de ces niveaux :

- Argon : résonance de 8 hν avec le niveau 5p - la transition 5p→5s donne $\omega_{5p\to5s} = 3.528\ cm^{-1}$.
- Krypton : résonance de 7 hν avec le niveau 6s - la transition 6s→6p donne $\omega_{6s\to6p} = 3.600\ cm^{-1}$.
- Xénon : résonance de 6hν avec le niveau 7p - la transition 7p→6d donne $\omega_{7p\to6d} = 1.160\ cm^{-1}$.

En conclusion de ce chapitre l'on peut dire que :

- La résonance multiphotonique a lieu sur le niveau $11p[3/2]_{1,2}$ du néon.
- L'ionisation se fait en deux étapes [38] [17] :

1°) Excitation du niveau $11p[3/2]$ par absorption simultanée de 12 photons.

2°) Ionisation à partir de cet état d'excitation par absorption d'un photon supplémentaire.

CHAPITRE 4

INFLUENCE DES FLUCTUATIONS D'INTENSITE DE LA LUMIERE EMISE PAR LE LASER.

Il a été supposé dans les théories précédentes (résumées au chapitre 5) que le champ électromagnétique de l'onde "laser" était monochromatique, c'est à dire que l'Hamiltonien d'interaction $V(\vec{r},t)$ avait une dépendance temporelle en $e^{-i\omega t}$. Cette hypothèse n'est jamais dans l'expérience parfaitement justifiée, car le rayonnement possède toujours d'une part une largeur spectrale non nulle, d'autre part une émission sur plusieurs modes. Il parait donc nécessaire de faire intervenir dans la théorie les fluctuations du champ électromagnétique résultant.

Nous avons enregistré lors de chaque tir, l'interférogramme Pérot et Fabry de la lumière. Nous avons remarqué que notre laser fonctionnait sur plusieurs modes et que l'effet de température sur le rubis modifiait la (structure) configuration de ces modes.

4.1 - Etude de la lumière délivrée par un laser multimode

Si le laser délivre plusieurs modes distants en fréquence angulaire de $\Delta\omega_i$, tels que les $\Delta\omega_i$ soient petits comparés à la fréquence angulaire moyenne d'émission de la lumière, il apparait dans la puissance lumineuse des fluctuations rapides autour de la valeur détectée par une cellule photoélectrique, résultant d'un battement entre les différents modes.

Si les modes évoluent en phase au cours du temps, leur vibration peut être représentée par

$$A_o \cos \omega_o t \quad \text{pour le 1er mode.} \qquad 4.1(1)$$

$$A_1 \cos(\omega_o t + \Delta\omega_1 t) \quad \text{pour le 2ème mode.}$$

$$A_2 \cos(\omega_o t + \Delta\omega_2 t) \quad \text{pour le 3ème mode.}$$

$A_n \cos(\omega_o t + \Delta\omega_n t)$ pour le n+1 mode.

L'amplitude résultante est alors variable au cours du temps. Elle est donnée par le module B du nombre complexe

$$Z = e^{j\omega_o t}\left[A_o + A_1 e^{j\Delta\omega_i t} + \ldots A_n e^{j\Delta\omega_n t}\right] = e^{j\omega_o t} \sum_{i=o}^{n} A_i e^{j\Delta\omega_i t}$$

$$= e^{j\omega_o t} \Sigma A_i(\cos \Delta\omega_i t + i \sin \Delta\omega_i t) = B\, e^{j\omega t}$$

et l'intensité vaut :

$$B^2 = (\Sigma A_i \cos \Delta\omega_i t)^2 + (\Sigma A_i \sin \Delta\omega_i t)^2 \qquad 4.1(2)$$

L'intensité normalisée par rapport à l'intensité moyennée sur un long intervalle de temps ΣA_i^2 est donné par :

$$B^2_{nor.} = \frac{(\Sigma A_i \cos \Delta\omega_i t)^2 + (\Sigma A_i \sin \Delta\omega_i t)^2}{\Sigma A_i^2} \qquad 4.1(3)$$

Si $A^2(t)$ est la loi d'évolution au cours du temps de la puissance du laser mesurée par une cellule photoélectrique, l'évolution de la puissance lumineuse effective émise est donnée par :

$$P(t) = A^2(t) \frac{(\Sigma A_i \cos \Delta\omega_i t)^2 + (\Sigma A_i \sin \Delta\omega_i t)^2}{\Sigma A_i^2} \qquad 4.1(4)$$

Nous avons supposé que les modes avaient la même loi d'évolution au cours du temps. Cette hypothèse a été vérifiée par l'expérience suivante :

On enregistre par l'intermédiaire d'une camera rapide à fente de type S.T.L. l'interférogramme Pérot et Fabry de la lumière émise par le laser. La résolution d'un tel appareil est de 5ns par millimètre d'écran balayé. L'évolution des anneaux au cours du temps est enregistrée sur plaque photographique.

La microdensitométrie de la plaque permet de constater :

1°) que pendant la durée de l'impulsion la fréquence des différents modes ne change pas ;

2°) que l'évolution de ces différents modes suit la même loi.

4.2 - Influence de la structure du rayonnement sur la section efficace d'ionisation multiphotonique [39]

Soit $\phi(t)$, le flux effectif de lumière arrivant dans la zone d'interaction avec la matière (focalisation). L'atome qui interagit avec les photons du laser est un détecteur quantique dont le temps de réponse est très court. Conformément au principe d'incertitude, l'interaction ne se fait pas d'une manière instantanée, mais en un temps de l'ordre de $\frac{1}{\omega}$, ω étant la fréquence angulaire du rayonnement. Les fluctuations de $\phi(t)$ sont de l'ordre de $\frac{1}{\Delta\omega}$, $\Delta\omega$ étant l'écart moyen en fréquence angulaire entre modes. Or :

$$\frac{1}{\Delta\omega} >> \frac{1}{\omega}$$

L'atome est capable, alors, de "voir" toutes les fluctuations de lumière.

En général, on ne peut pas enregistrer sur des appareils ces fluctuations, car le temps de réponse des cellules photoélectriques est plus important que le temps moyen d'une fluctuation. Si τ est le temps de réponse du système de détection, on peut écrire :

$$\tau >> \frac{1}{\Delta\omega} >> \frac{1}{\omega} \qquad 4.2(1)$$

Nos impulsions durent 120 nanosecondes en moyenne. Pour pouvoir enregistrer entièrement les impulsions et connaître la loi $A^2(t)$, il est nécessaire de travailler à des fréquences de balayage d'oscilloscope relativement faibles (200 ns par carreau) et donc d'annuler toute information sur les fluctuations. Le temps τ à considérer pour le système de détection est bien supérieur au temps de réponse limite d'une cellule photoélectrique rapide.

Le phénomène multiphotonique est proportionnel au flux élevé à la puissance N. De ce fait, toute fluctuation de la lumière pendant le temps $\frac{1}{\Delta\omega} >> \frac{1}{\omega}$, donnant des surintensités de puissance lumineuse par rapport à la puissance moyenne pèse beaucoup dans le processus multiphotonique.

Comme la puissance mesurée par une cellule ne fait pas apparaître ces fluctuations, la détermination à partir de cette grandeur de la section efficace d'ionisation ne donne qu'une valeur apparente qui dépend non seulement de la nature de l'atome à ioniser et de l'énergie des photons incidents, mais aussi de la structure du rayonnement résultant de chaque tir "laser".

Ainsi pour déterminer la section efficace réelle, il faut faire intervenir dans les mesures expérimentales la puissance effective délivrée par le laser. C'est celle qui résulte de l'incohérence partielle de la lumière.

Nous allons, maintenant, montrer quelle relation existe entre la section efficace apparente K_m (multimode) et la section efficace réelle K_1 (monomode).

La relation donnant le nombre de chargés créées par effet multiphotonique peut se mettre sous la forme :

$$n_e = Kn_o\, G(N) \int_o^T P^N(t)dt \qquad 4.2(2)$$

où G(N) est un coefficient relié à la distribution spatiale du flux que nous calculons au chapitre 5, paragraphe 1, et T la durée d'émission du rayonnement laser.

Si <P> est la puissance mesurée par la cellule et P la puissance effective déduite de la structure de la lumière, on peut relier le nombre de charges mesurées expérimentalement sur un tir par les deux relations :

$$n_e = K_m n_o G(N) \int_o^T \langle P \rangle^N \, dt = K_1 n_o G(N) \int_o^T P^N dt \qquad 4.2(3)$$

Soit ΔT le temps d'une fluctuation de puissance lumineuse autour de la valeur <P>. Pendant ce temps il se forme Δn_e charges.

$$\Delta n_e = K_m n_o G(N) \int_o^{\Delta T} \langle P \rangle^N \, dt = K_1 n_o G(N) \int_o^{\Delta T} P^N dt \qquad 4.2(4)$$

Cette relation devient <P> étant constant pendant ΔT

$$K_m \langle P \rangle^N \Delta T = K_1 \int_o^{\Delta T} P^N dt \qquad 4.2(5)$$

On remarque que :

$$\frac{1}{\Delta T} \int_o^{\Delta T} P^N dt$$

est la valeur moyenne de P^N calculée sur le temps ΔT. Nous l'écrirons $\langle P^N \rangle$. La relation devient alors :

$$K_m \langle P \rangle^N = K_1 \langle P^N \rangle$$

et $$K_m = K_1 \frac{\langle P^N \rangle}{\langle P \rangle^N} \qquad 4.2(6)$$

Nous appelons facteur de mode F le rapport :

$$F = \frac{\langle P^N \rangle}{\langle P \rangle^N} = \frac{1}{\Delta T} \int_0^{\Delta T} \left(\frac{P}{\langle P \rangle}\right)^N dt \qquad 4.2(7)$$

La relation 4.2(6) devient :

$$K_m = K_1 F \qquad 4.2(8)$$

La section efficace apparente est toujours supérieure à la section efficace réelle.

Nous allons transformer la relation 4.2(7). Pour cela nous introduisons la densité de probabilité de flux $Z(\phi)$.

Par définition :

$$\int_0^{\infty} Z(\phi) d\phi = 1 \qquad 4.2(9)$$

$Z(\phi)$ est la probabilité pour que le flux soit compris entre ϕ et $\phi + d\phi$. On peut montrer [40] qu'elle est proportionnelle au temps dt pendant lequel le flux est compris entre $\phi(t)$ et $\phi(t) + \phi(t + dt)$. Si le temps caractéristique d'évolution du flux est ΔT :

$$Z(\phi(t))d\phi = \frac{dt}{\Delta T}$$

On vérifie alors que :

$$\int_0^{\infty} Z(\phi) d\phi = \int_0^{\Delta T} \frac{dt}{\Delta T} = 1 \qquad 4.2(10)$$

et $$F = \frac{1}{\Delta T} \int_0^{\Delta T} \frac{P^N(t)}{\langle P \rangle^N} dt = \frac{1}{\Delta T} \int_0^{\Delta T} \left(\frac{\phi}{\langle \phi \rangle}\right)^N dt$$

s'écrit compte tenu de 4.2(10) :

$$F = \int_0^\infty \left(\frac{\phi}{\langle\phi\rangle}\right)^N Z(\phi)d\phi \qquad 4.2(11)$$

Calculons F dans différents cas :

4.2.1 - Laser monomode

Dans ce cas :

$$Z(\phi) = \delta(\phi - \langle\phi\rangle) \text{ et} \qquad 4.2.1(1)$$

$$F = \int_0^\infty \left(\frac{\phi}{\langle\phi\rangle}\right)^N \delta(\phi - \langle\phi\rangle)\, d\phi = 1$$

$$K_m = K_1 \qquad 4.2.1(2)$$

Pour un laser monomode la section efficace apparente d'ionisation multiphotonique est la section efficace réelle.

4.2.2 - Laser constitué d'un très grand nombre de modes statistiquement indépendants

La loi de densité de probabilité de flux est identique à celle du rayonnement de corps noir

$$Z(\phi) = \frac{1}{\langle\phi\rangle} e^{-\phi/\langle\phi\rangle} \qquad 4.2.2(1)$$

$$F = \int_0^\infty \left(\frac{\phi}{\langle\phi\rangle}\right)^N \frac{1}{\langle\phi\rangle} e^{-\phi/\langle\phi\rangle} d\phi = N!$$

$$K_m = K_1 . N!$$

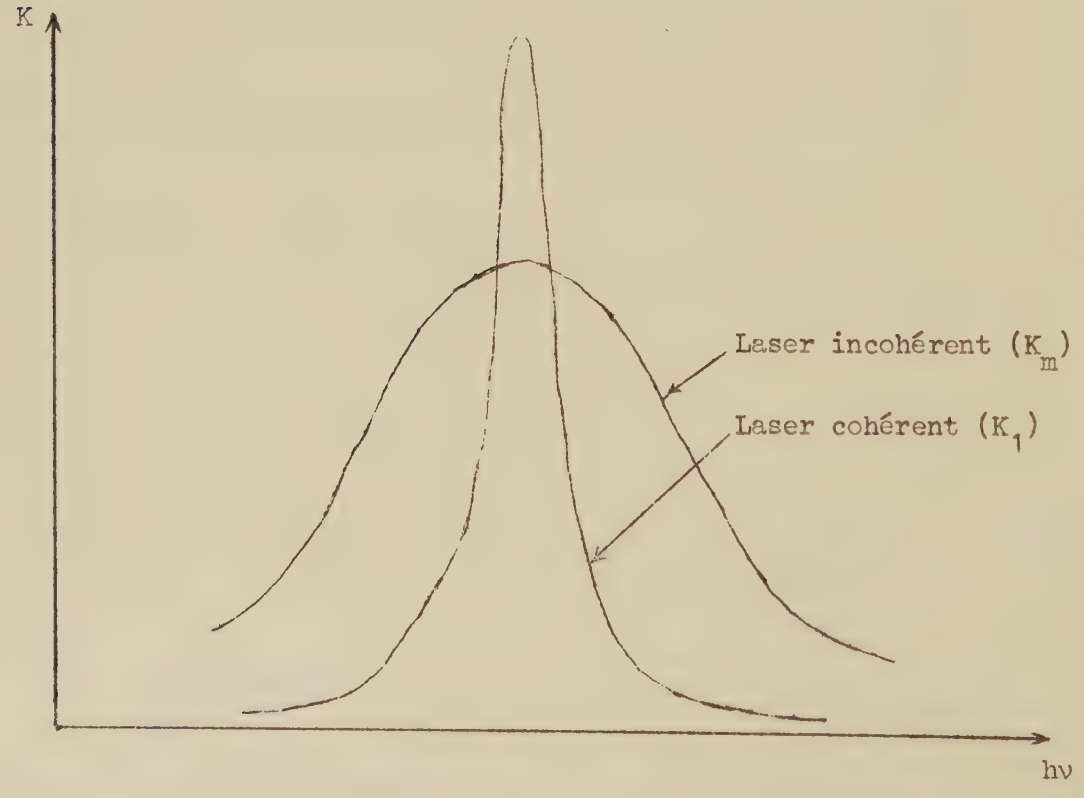
Pour un "laser" complètement incohérent la section efficace apparente est N! fois la section efficace réelle.

Pour un processus à 13 photons : $N! = 6.10^9$.

4.2.3 - Laser constitué de quelques modes non indépendants

F est compris entre 1 et N! C'est ce qui apparait dans les conditions de fonctionnement de notre laser. Il est nécessaire de calculer F pour chaque tir à partir de la relation 4.2(7).

Remarque 1 : Plus le laser émet sur un grand nombre de modes, plus son rayonnement est incohérent. Le nombre de charges créées dans un cas non résonnant est plus grand qu'avec un laser cohérent. La largeur d'émission étant plus importante, un couplage éventuel avec un niveau"pseudo-résonnant" se fait beaucoup mieux ; mais alors, lorsqu'il y a résonance le phénomène est beaucoup moins sélectif. Le terme de pondération qu'il faut considérer au dénominateur de la formule 3.2.2(5) donnant la probabilité d'ionisation n'est plus la largeur du niveau Γ_s mais la largeur de la raie laser qui est alors bien plus grande. On pourrait représenter l'évolution de la section efficace autour d'une résonance par le schéma suivant :



Le fait de tenir compte des fluctuations de l'intensité lumineuse permet de ramener les mesures effectuées à l'aide d'un laser à émission incohérente à celles correspondantes qui proviendraient de l'utilisation d'un laser à émission cohérente.

Remarque 2 : Nous avons supposé qu'un laser émettant sur un seul mode était parfaitement cohérent. En réalité, s'il existe une largeur de raie, le laser est partiellement incohérent.

4.3 - Etude expérimentale de la lumière délivrée par le laser

4.3.1 - Détermination du nombre de modes et de leur écart en fréquence angulaire

Une partie du faisceau laser (figure 1) est envoyée sur les deux lames d'un interféromètre de Pérot et Fabry. L'écart entre les lames dont le revêtement est fait pour $\lambda = 6943$ Å est de plusieurs centimètres (environ 2,13) de façon à pouvoir séparer des raies de longueurs d'ondes très voisines. En effet, le pouvoir de résolution d'un interféromètre de ce type est [41].

$$R = \frac{\lambda}{d\lambda} = \frac{2n}{\lambda}\frac{e}{f} \qquad 4.3.1(1)$$

où n est l'indice de réfraction du milieu.

e l'épaisseur de l'étalon.

$f = \frac{1 - r}{2\pi\sqrt{r}}$ avec r coefficient de réflexion des lames.

On voit qu'il est proportionnel à l'épaisseur e entre lames.

Les photographies de la planche IV représentent des interférogrammes de tirs. Nous avons sélectionné des tirs à 1, 2, 3, 4 et 5 modes. La photographie a ne représente pas un tir rigoureusement monomode mais c'est la configuration obtenue qui s'en rapproche le plus.

Il est possible de déterminer l'écart en longueur d'onde entre les différents modes.

Pour un anneau donné le numéro est le même pour chacune des composantes. On peut donc écrire pour deux composantes d'un même anneau :

$$2e \cos i = k\lambda$$

$$2e \cos (i - \Delta i) = k(\lambda + \Delta\lambda)$$

$$\frac{\cos(i - \Delta i)}{\cos i} = \frac{\lambda + \Delta\lambda}{\lambda} = 1 + \frac{\Delta\lambda}{\lambda}$$

$$\Delta\lambda = \lambda \left[\frac{\cos(i - \Delta i)}{\cos i} - 1\right] \qquad 4.3.1(2)$$

On voit que, pour une épaisseur donnée, $\Delta\lambda$ ne dépend pas explicitement de e. Si l'on connait λ, la longueur d'onde d'une des composantes et les rayons angulaires de chacune des composantes, on peut déterminer l'écart $\Delta\lambda$ et en tirer le $\Delta\omega$ correspondant nécessaire au calcul de la puissance effective P(t).

$\Delta\lambda$ est de l'ordre de 0,1 Å, il dépend de la température et des conditions de fonctionnement du laser.

4.3.2 - Intensité de la lumière répartie sur chaque mode

Les interférogrammes sont enregistrés sur pellicule photographique de format 24 × 36, à grande sensibilité dans le rouge et le proche infrarouge (type Infrarouge 400 ASA). Ils sont exploités par microdensitométrie.

Les figures 11 à 17 représentent les densitométries des photographies de la planche IV. Le grandissement des planches par rapport au film est de 30. Nous avons enregistré 600 ou 700 interférogrammes que nous avons microdensitométrés dans les mêmes conditions (même coin, même amortissement, même grandissement, même vitesse de défilement). Les films utilisés ont été préalablement étalonnés.

En effet, la lumière reçue par la pellicule photographique est émise par le laser pendant des temps très courts de l'ordre de 100 ns. En général, la loi de noircissement d'un film en fonction de l'énergie n'est connue, pour un révélateur et un fixateur donnés, que pour des temps relativement longs (ordre de grandeurs, temps de pose donnés sur un appareil photographique).

Pour déterminer la relation qui existe entre le noircissement du film et l'énergie reçue par le film, on impressionne direc-

tement le film par la lumière "laser", sans traverser l'interféromètre Pérot et Fabry. On réalise plusieurs photographies en intercalant sur le trajet du faisceau des verres neutres de différentes épaisseurs dont on connait le pouvoir atténuateur.

Les films, après développement,sont densitomètres.

La courbe de la figure 18 représente la relation qui existe entre le signal de noircissement S et l'énergie E reçue par le flux. Cette relation est :

$$S = a + k \log E \qquad 4.3.2(1)$$

avec $a = 4,7$

Pour les mesures relatives que nous avons effectuées seule la pente de la droite compte et

$$E = 10^{-a/k}\ 10^{S/k}$$

peut être pris égal à :

$$E = 10^{S/4,7} \qquad 4.3.2(2)$$

Remarque : Une mesure relative de l'énergie répartie dans les différents modes est suffisante. En effet, pour calculer la puissance effective délivrée par le laser, on normalise l'amplitude résultante élevée au carré que l'on multiplie par la relation donnant la loi d'évolution au cours du temps du signal délivré par la cellule photoélectrique.

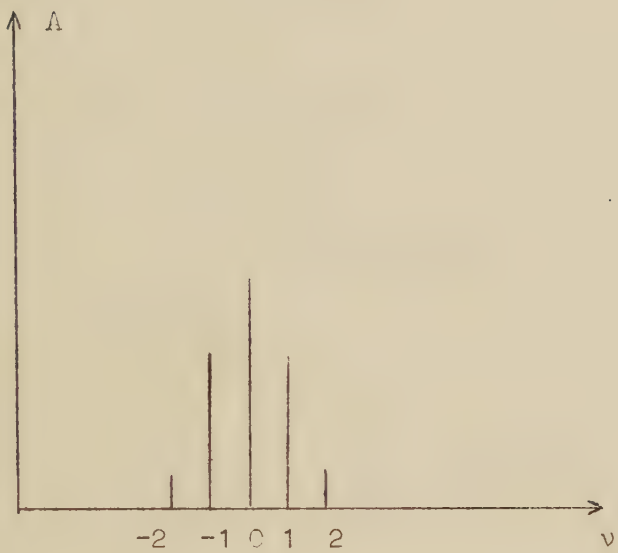
Le laser a été étalonné en longueur d'onde en fonction de sa température d'émission. Le tableau II donne la température du barreau, la longueur d'onde de la lumière et l'énergie des photons émis qui lui correspondent.

Temp. °C	λ air	λ vide Correction + 1,92 Å	E eV
- 24,5	6941,01	6942,93	1,785620
- 30	6940,68	6942,60	1,785707
- 32,5	6940,53	6942,42	1,785753
- 35,5	6940,35	6942,27	1,785791
- 36	6940,31	6942,235	1,7858
- 38,5	6940,17	6942,09	1,785839
- 41	6940,02	6941,34	1,785876
- 44	6939,84	6941,76	1,785923
- 47	6939,66	6541,58	1,785969
- 50	6939,48	6941,40	1,786015
- 53	6939,3	6941,22	1,786062
- 56	6939,14	6941,06	1,786103
- 59	6938,955	6941,06	1,78615

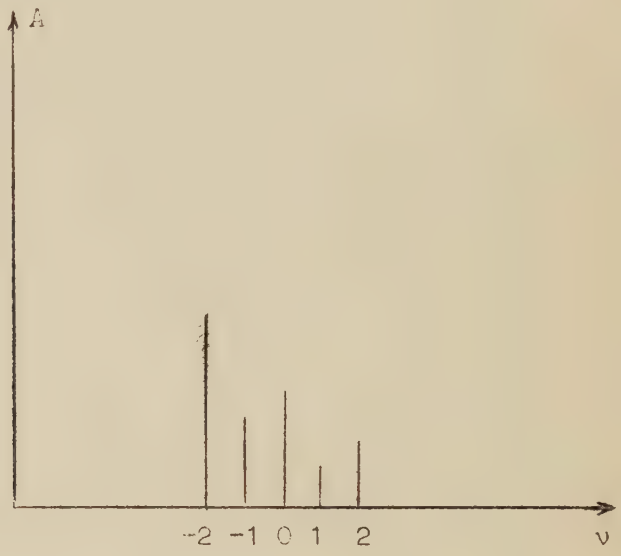
Tableau. II -

Lorsque la température varie de -25 °C à -60 °C l'énergie des photons ne varie que de quelques (10^{-3}) millièmes d'électron-volt.

4.3.3 - Variation de la fréquence d'émission du laser pendant la durée de l'impulsion



distribution symétrique (a)



distribution dissymétrique (b)

Si la configuration des modes émis par le laser n'est pas symétrique (figure (b)), la fréquence de la lumière résultante n'est pas constante pendant le temps de l'impulsion du laser. En effet :

L'amplitude résultant de la composition des différents modes est :

$$B = \sum_i A_i(\cos \Delta\omega_i t + i \sin \Delta\omega_i t)$$

La phase de cette vibration est :

$$\operatorname{tg} \psi = \frac{\sum_i A_i \sin \Delta\omega_i t}{\sum_i A_i \cos \Delta\omega_i t}$$

et $$\psi = \text{Arctg} \frac{\sum_i A_i \sin \Delta\omega_i t}{\sum_i A_i \cos \Delta\omega_i t} \qquad 4.3.3(1)$$

Cette phase dépend du temps, on peut l'écrire :

$$\psi = \Delta\Omega . t$$

Le déplacement en fréquence de l'amplitude résultante au temps t s'écrit :

$$\Delta\Omega = \frac{1}{t} \text{Arctg} \frac{\sum_i A_i \sin \Delta\omega_i t}{\sum_i A_i \cos \Delta\omega_i t} \qquad 4.3.3(2)$$

Cette formule montre que dans le cas le plus général $\Delta\Omega$ dépend du temps.

Il est indépendant du temps si les modes ont même amplitude et sont équidistants. Il en est de même si leur amplitude est distribuée symétriquement (figure (a)) par rapport à l'un des modes pris comme référence de phase.

- Cas de n modes de même amplitude déphasés de $\varphi = \Delta\omega t = \text{Cte}$.

Le calcul donne comme dans le cas classique du réseau de diffraction

$$\psi = (n-1) \frac{\varphi}{2} = (n - 1) \frac{\Delta\omega t}{2}$$

$$\Delta\Omega = \frac{1}{t} \psi = (n - 1) \frac{\Delta\omega}{2}$$

On voit bien que $\Delta\Omega$ est indépendant du temps.

- Cas où $\Delta\omega_i$ = Cte et où il existe une symétrie.

L'amplitude résultante se trouve à la fréquence du mode axe de symétrie du système. En effet, deux vibrations symétriques donnent une résultante sur l'axe quel que soit le temps. Nous avons évalué $\Delta\Omega$ pour les différents tirs réalisés. Il convient alors de savoir si $\Delta\Omega$ peut être négligé par rapport au déplacement de fréquence résultant de la variation de température.

Nous avons constaté que $\Delta\Omega$ oscillait dans des limites telles que l'énergie en électron-volt des photons émis pouvait être considérée comme constante au cours du temps de l'impulsion à la sixième décimale près. La température, quant à elle, donne des variations d'énergie portant sur la quatrième décimale de l'énergie, donc cent fois supérieures.

A partir des considérations exposées sur la structure de la lumière, on sait reconstituer l'évolution de la puissance lumineuse au cours du temps.

La figure 19 représente sur la courbe A la puissance effective délivrée par le laser et sur la courbe B la puissance correspondante mesurée par la cellule photoélectrique.

Cette courbe a été tracée à partir des données du tir à 3 modes dont l'interférogramme a été représenté sur la figure 14.

L'évolution de la puissance a été déterminée par un calcul numérique effectué sur machine.

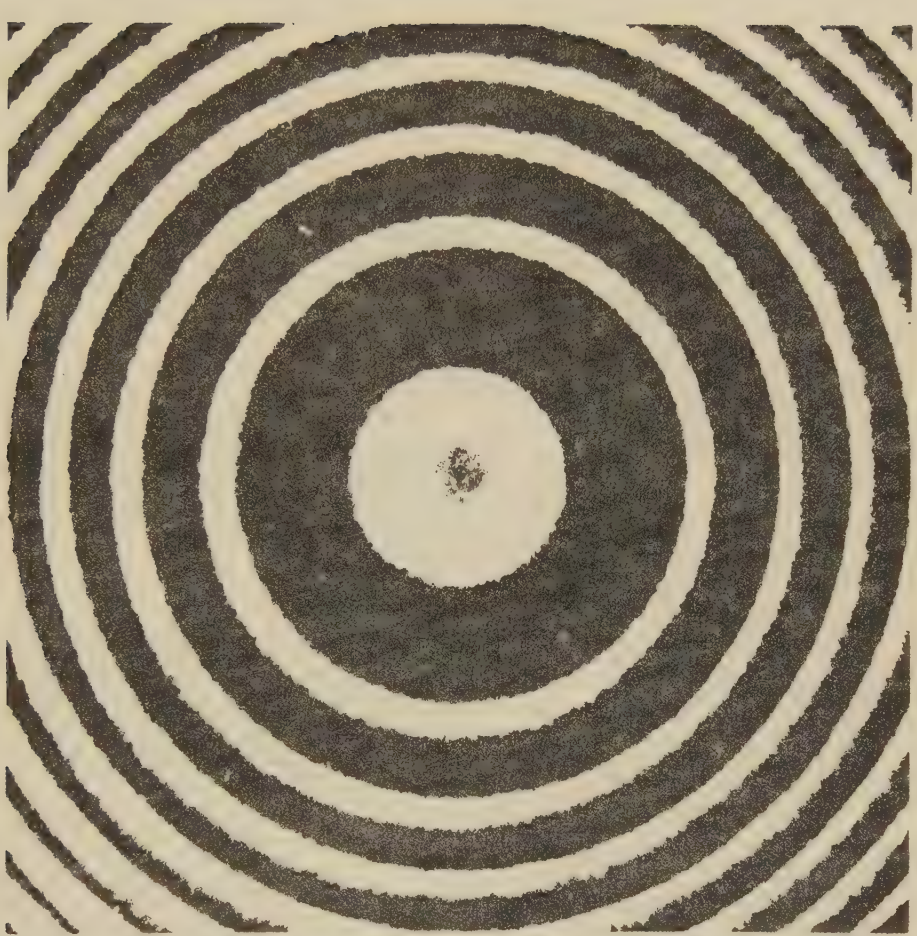
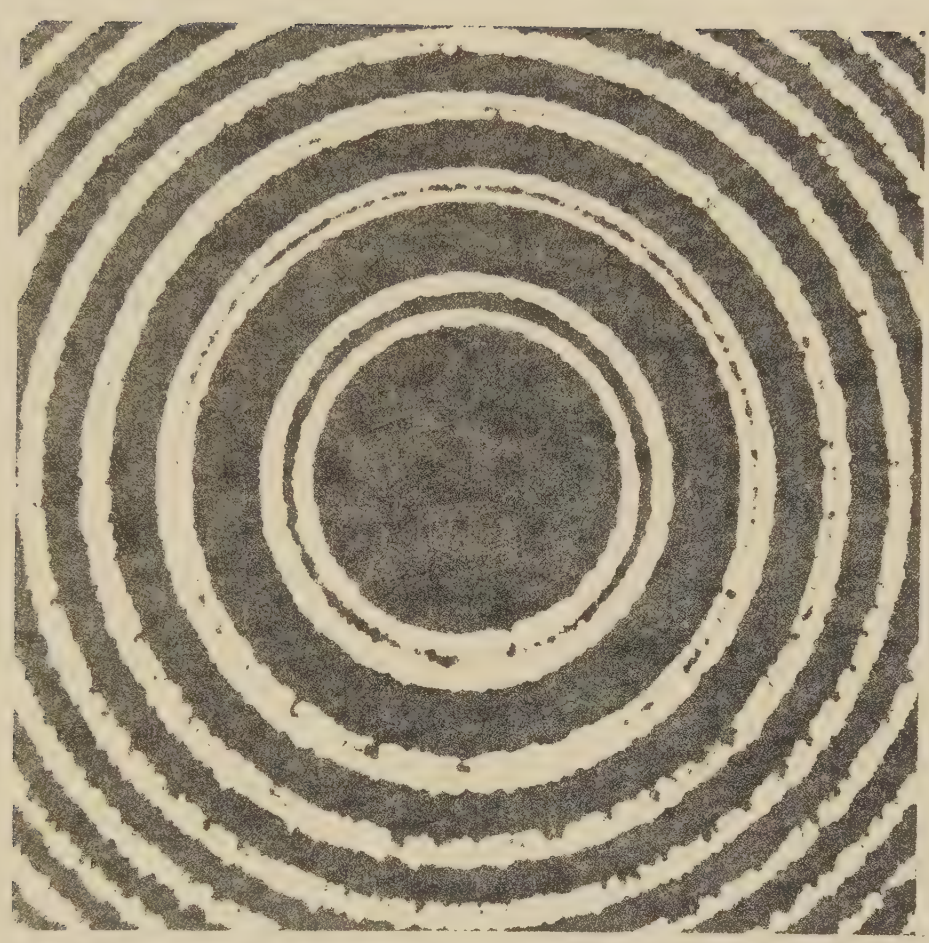
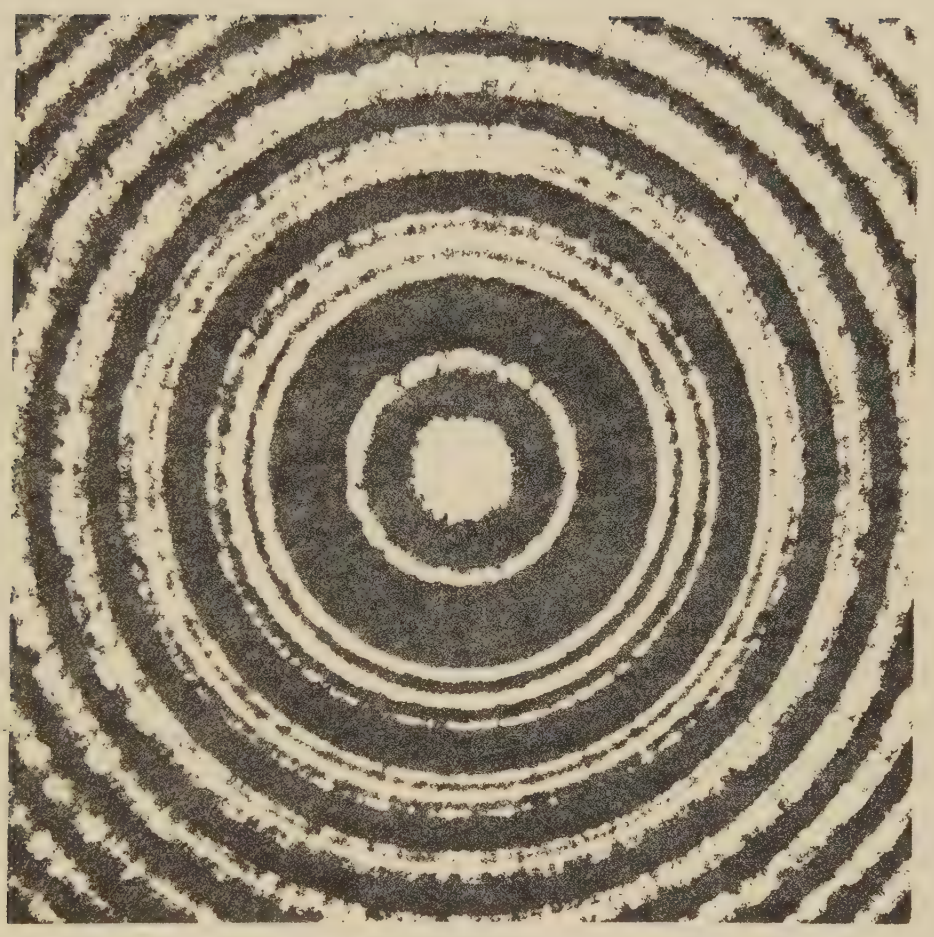


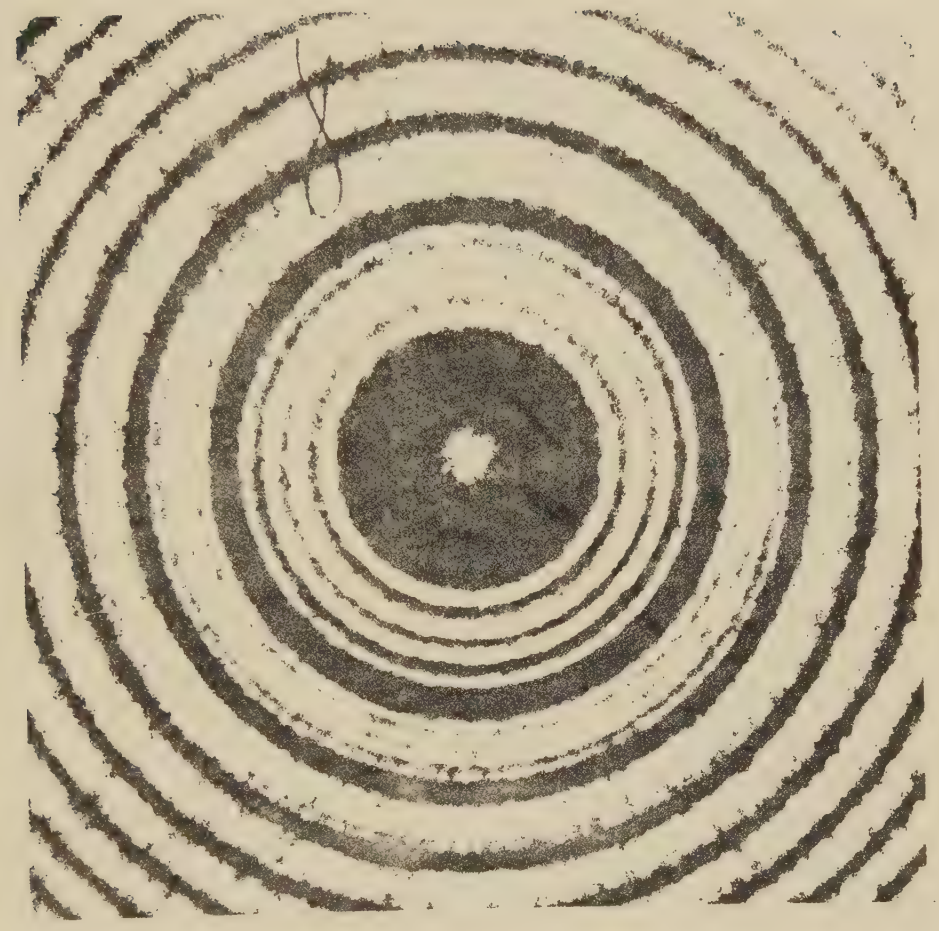
PLANCHE IV a

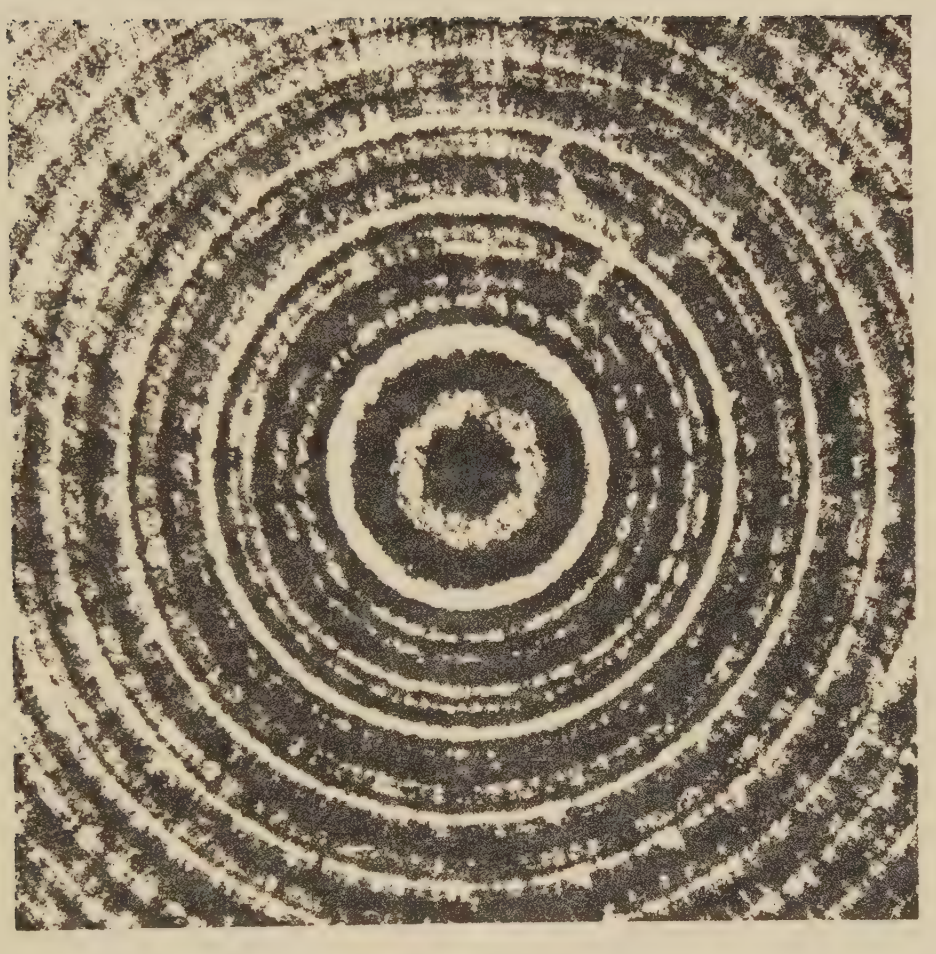
b



b







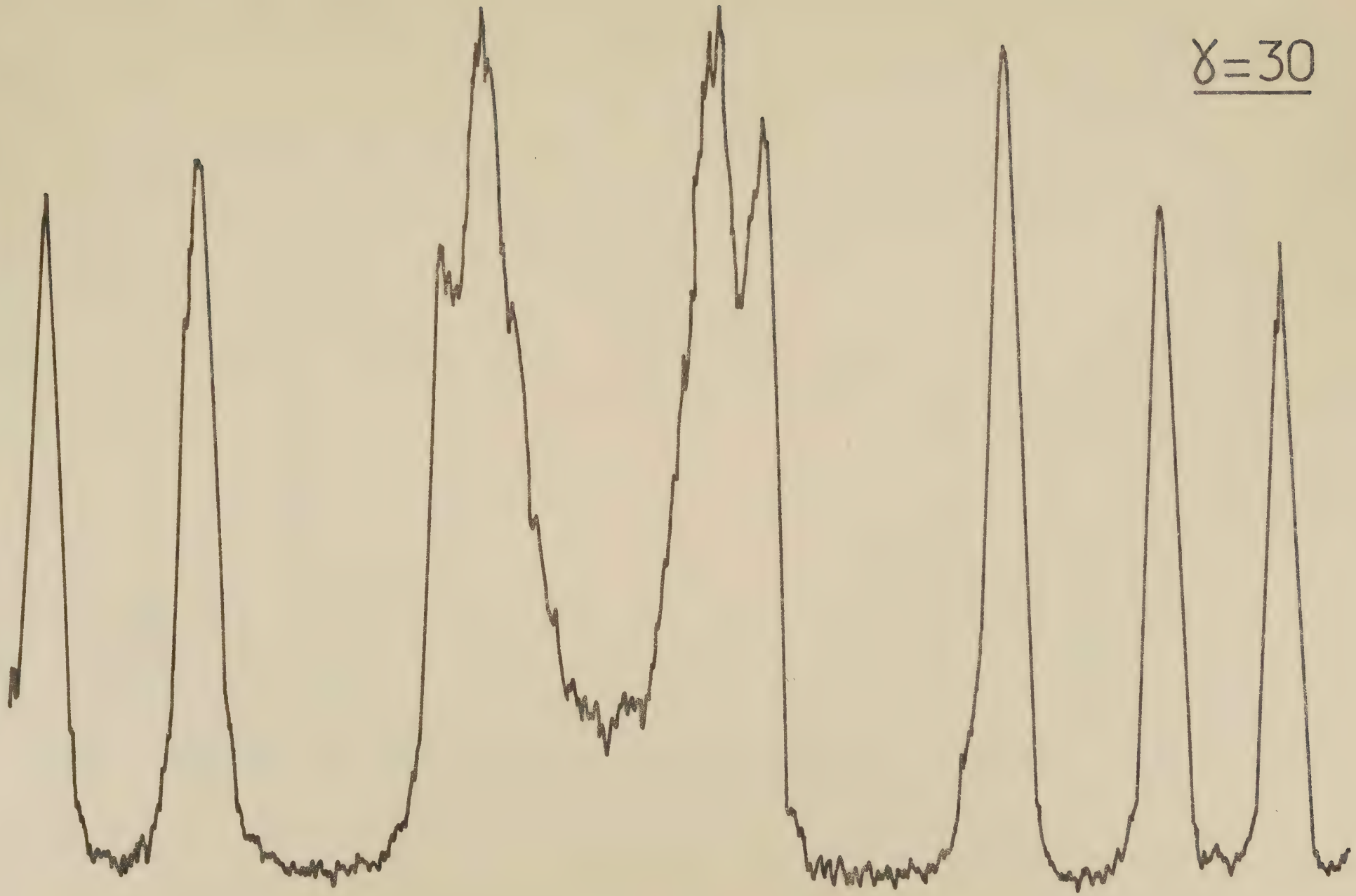


FIG 11

$\gamma = 30$

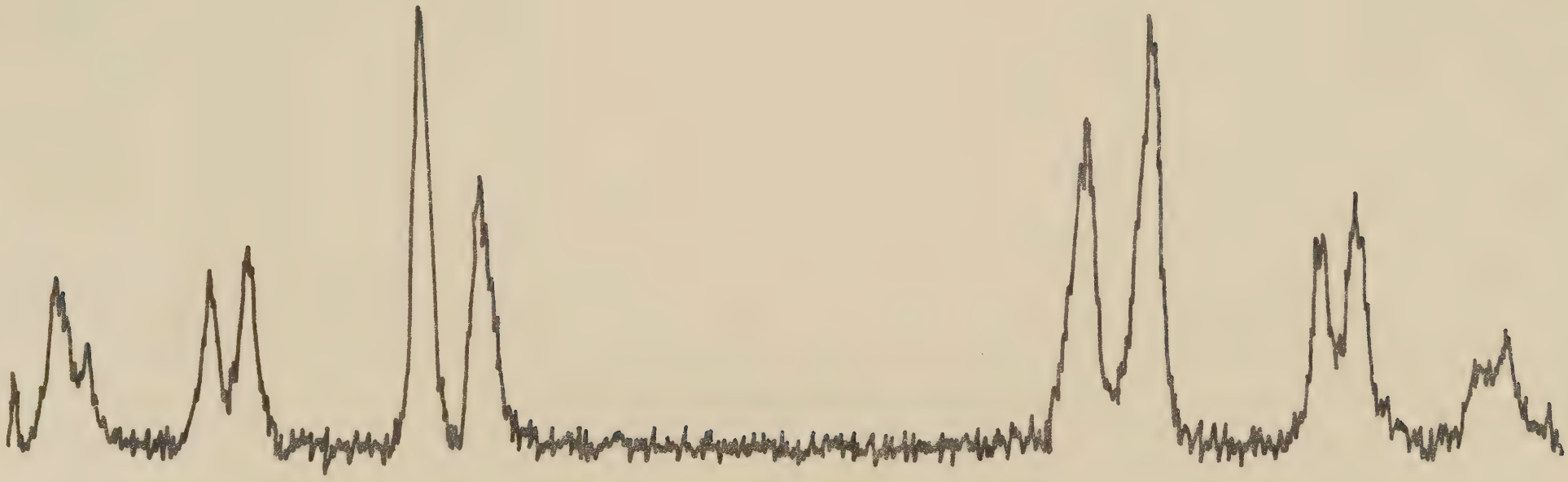


FIG 12

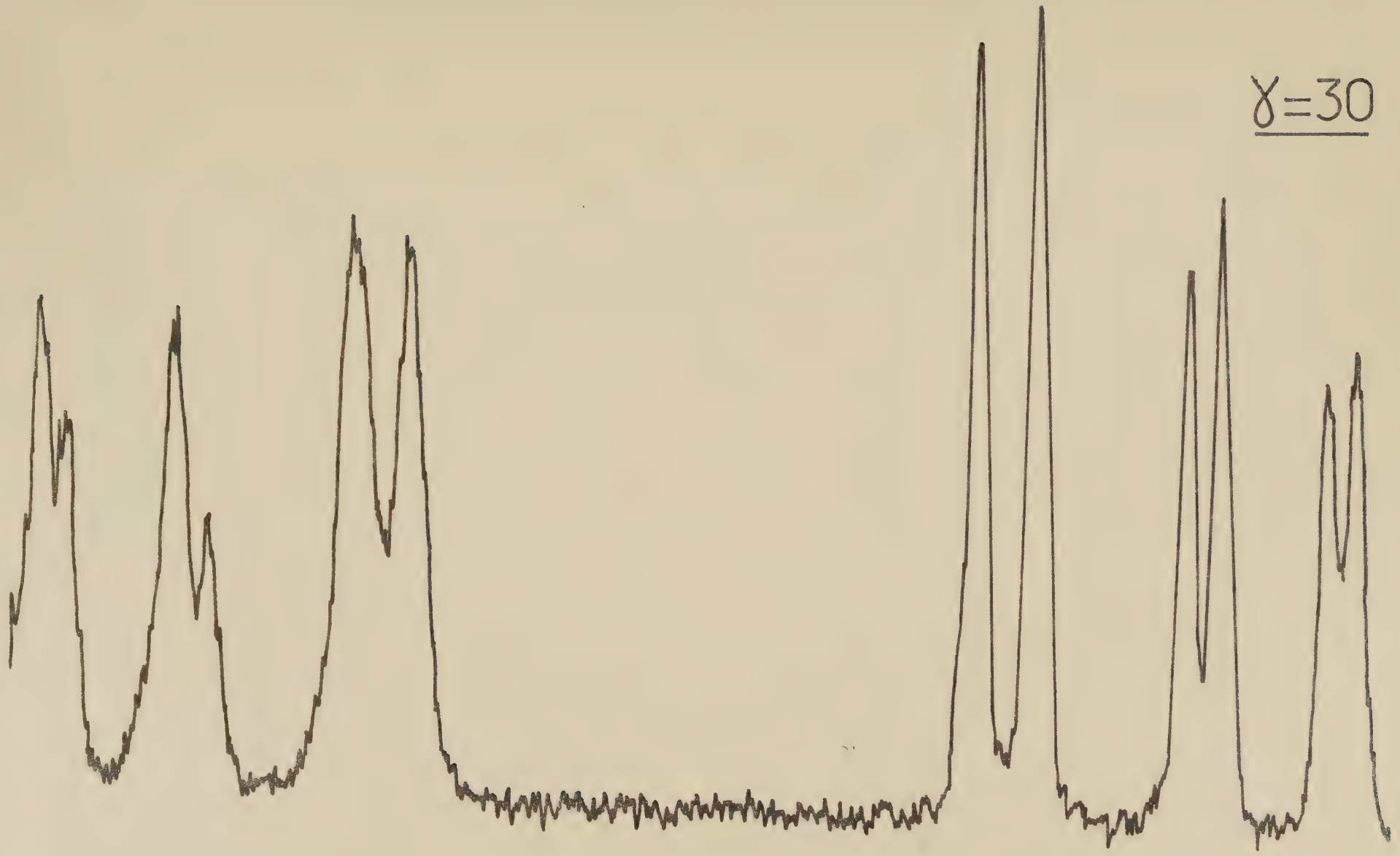


FIG 13

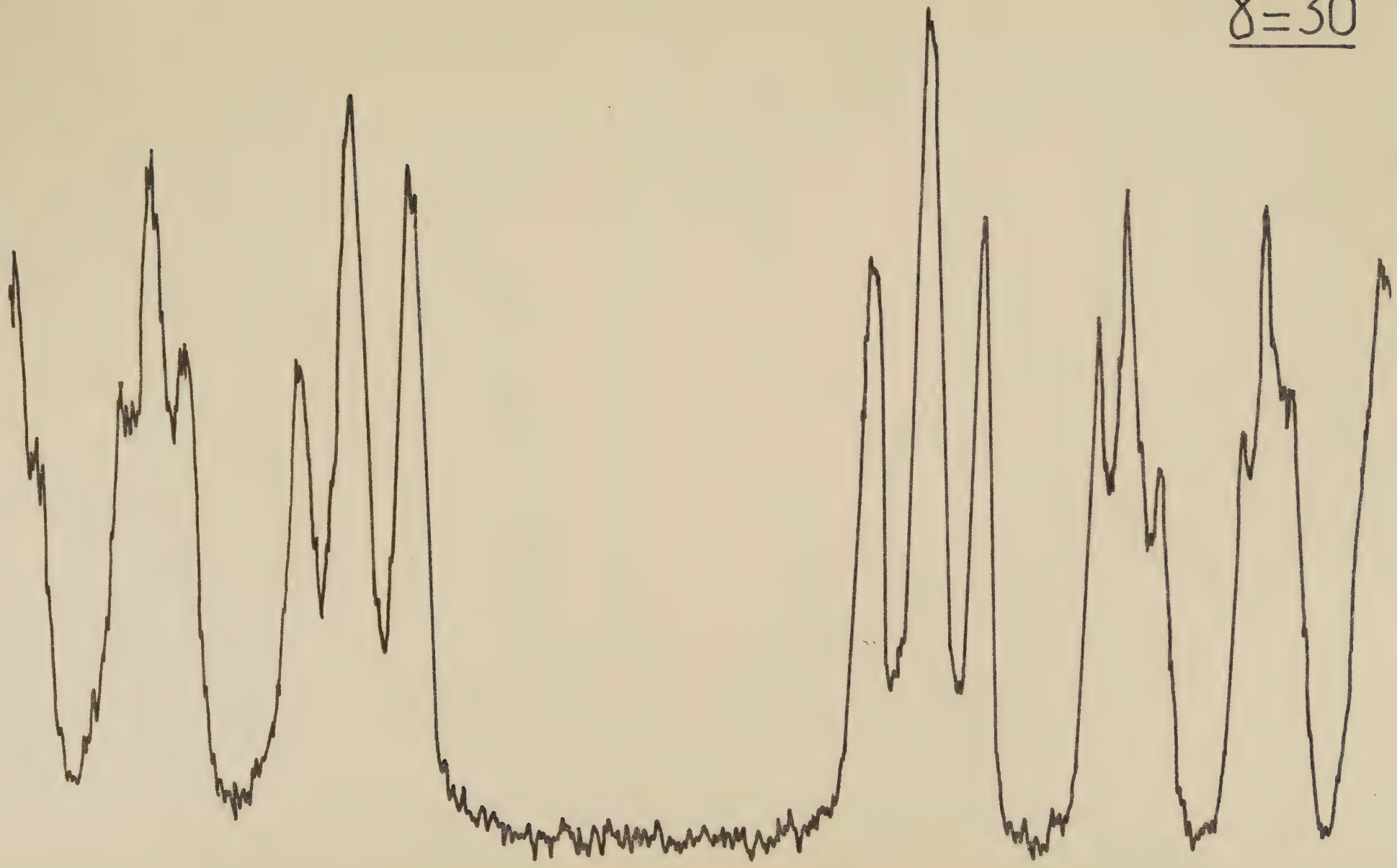


fig 14

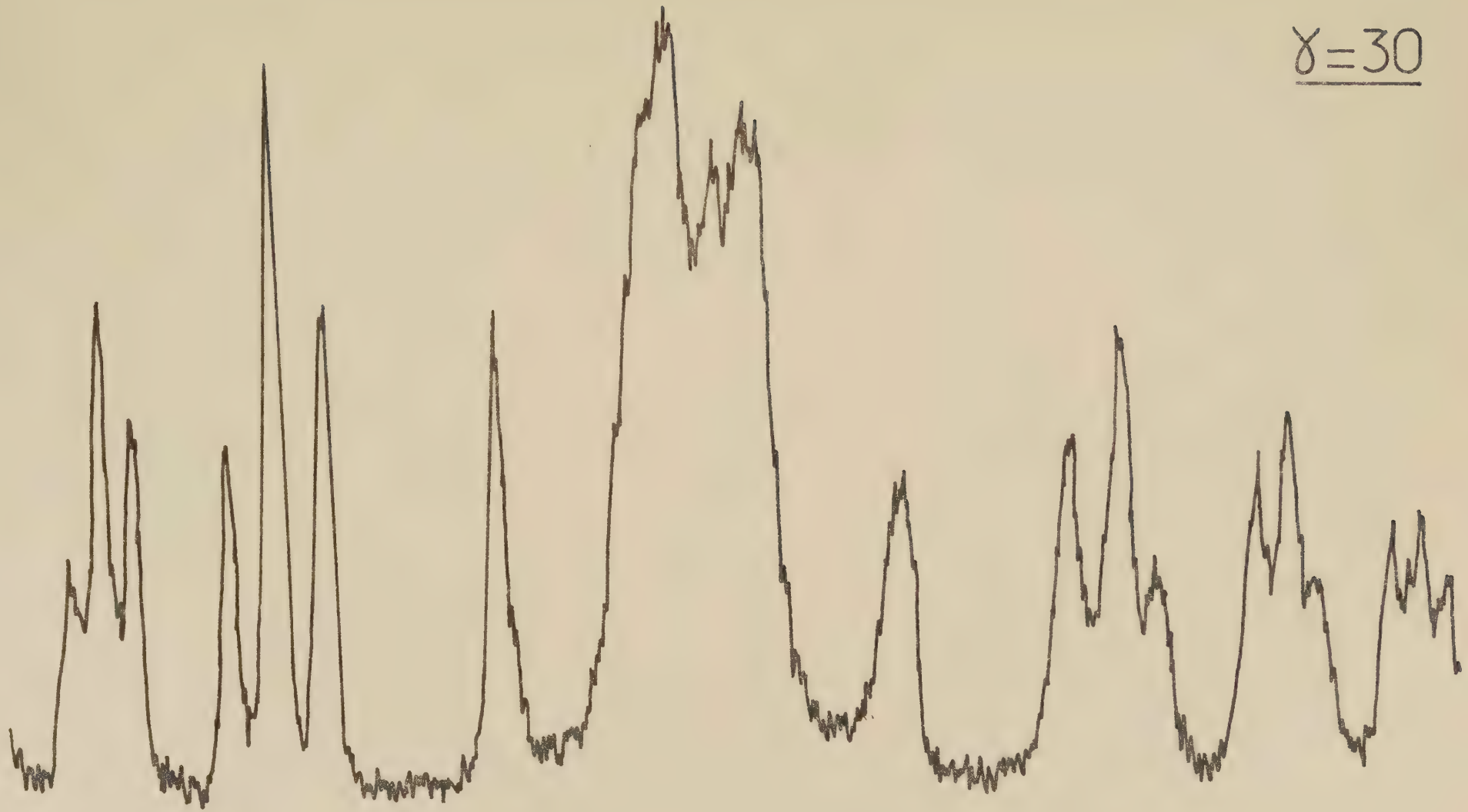


FIG 15

$\gamma = 30$

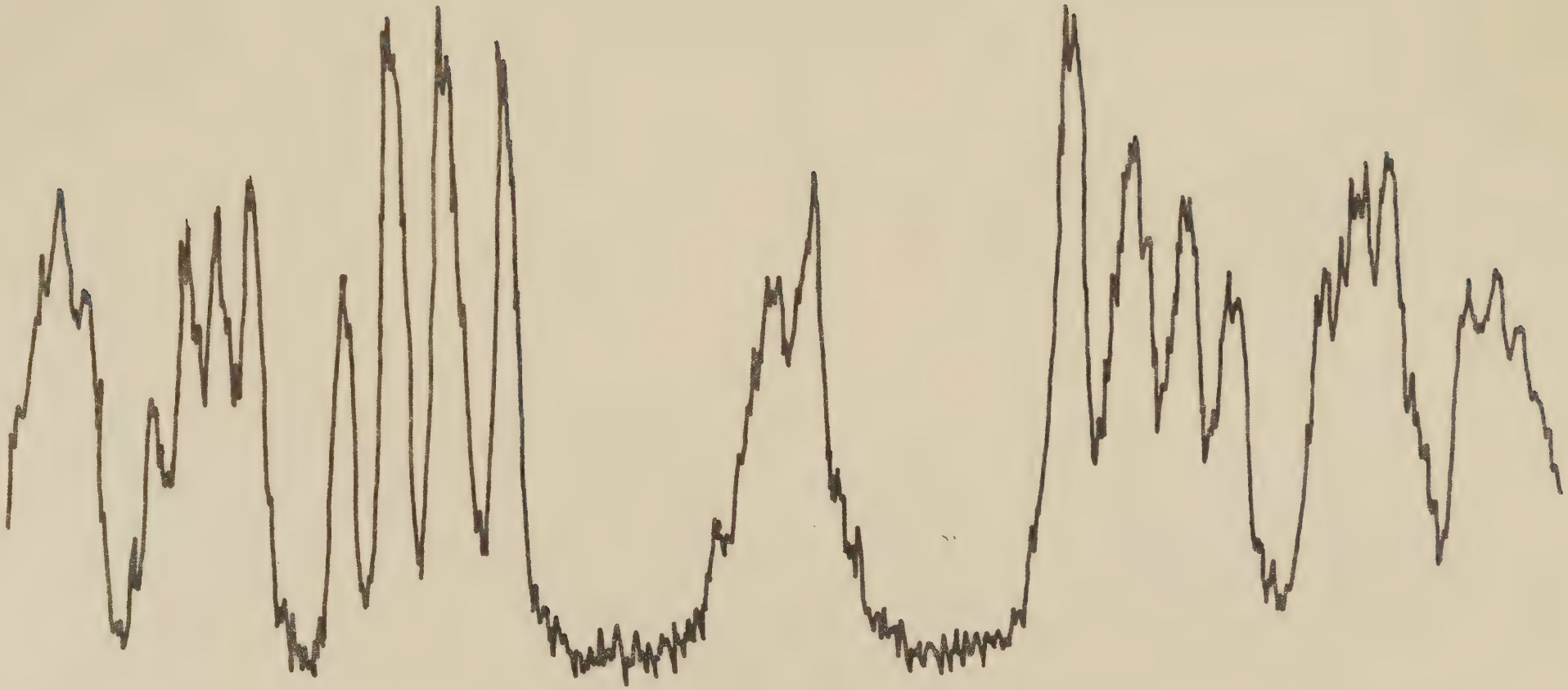


FIG 16

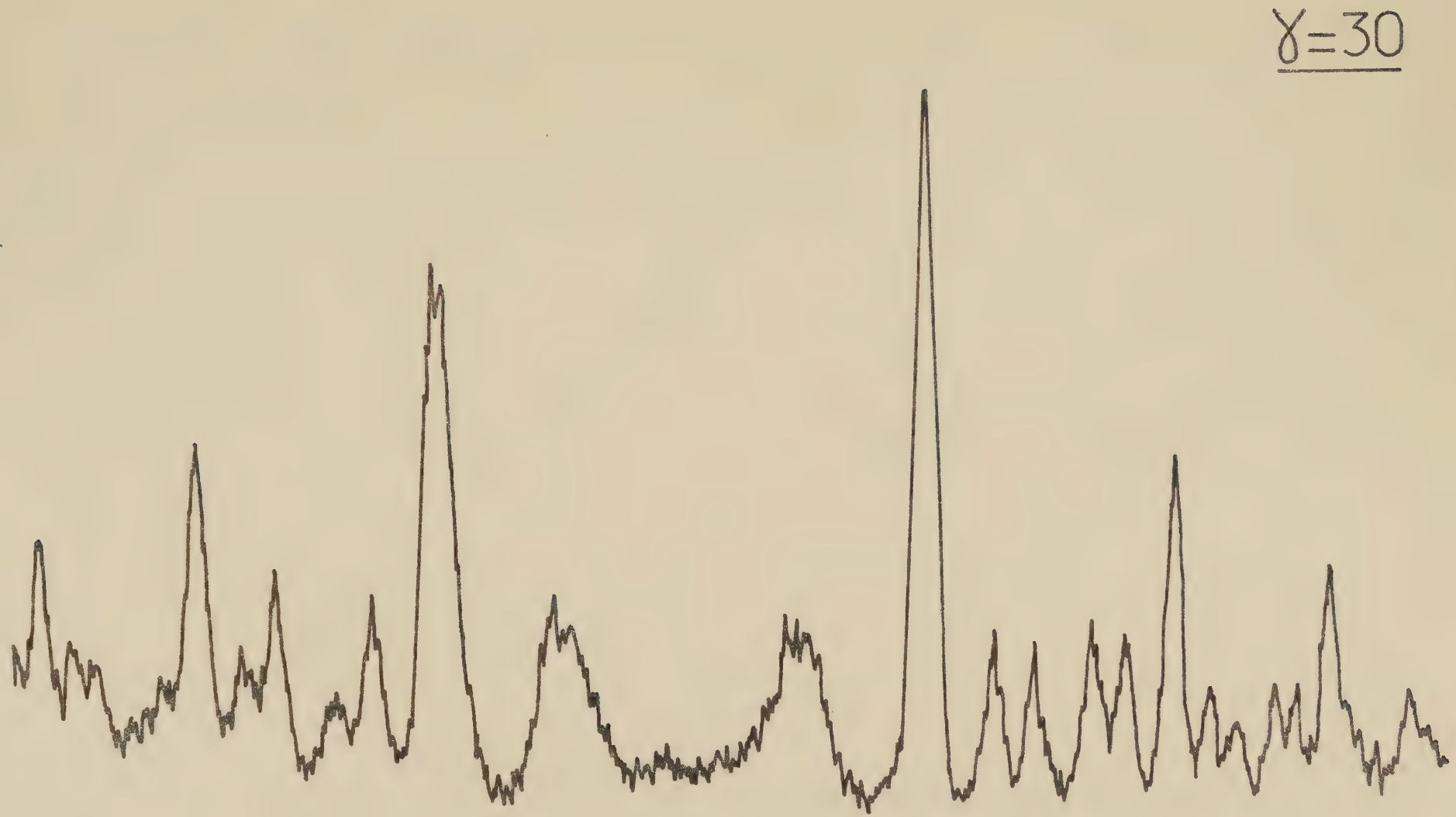


FIG 17

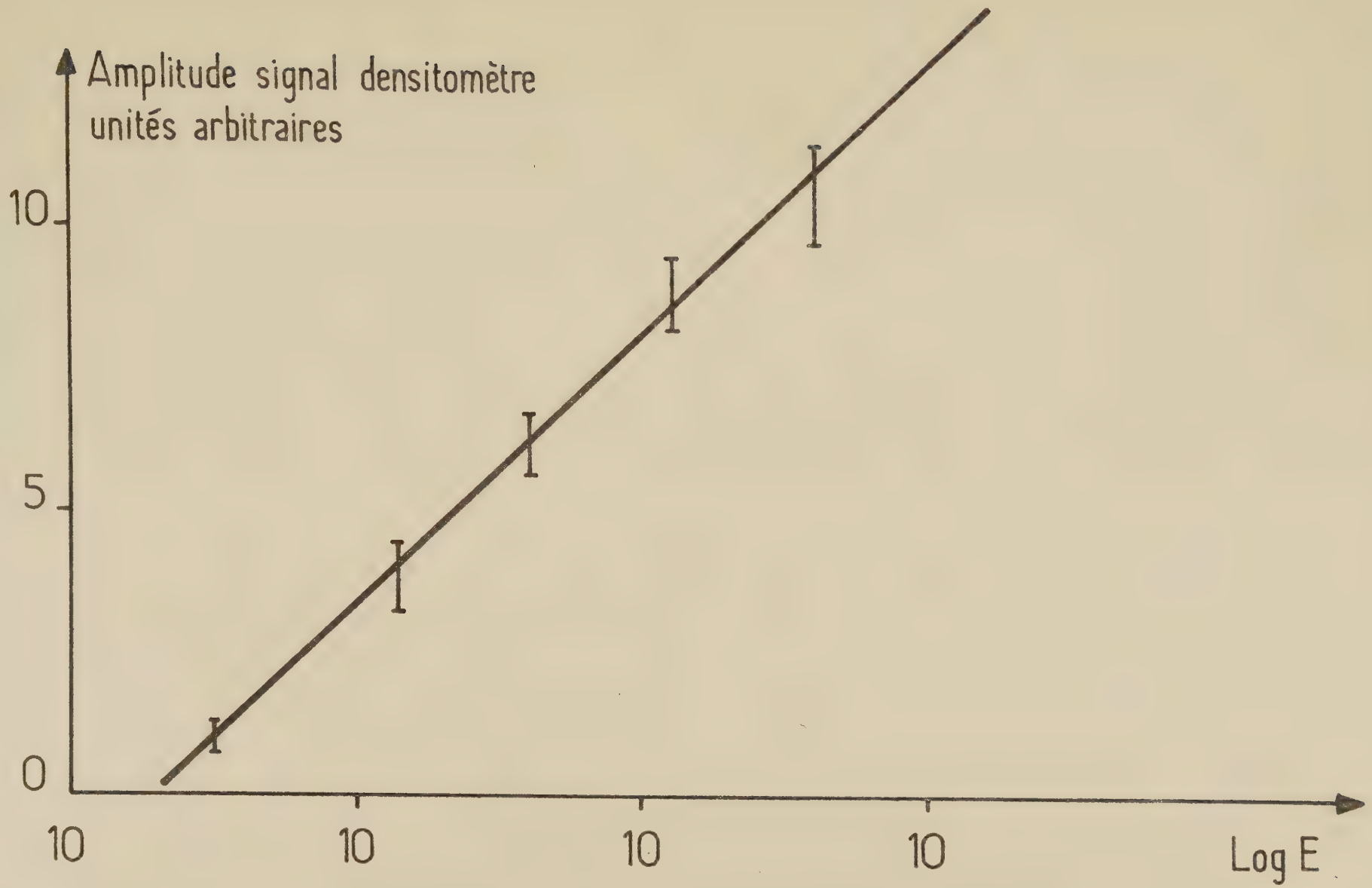


Fig. 18 _ Etalonnage du film I.R. 400 AS

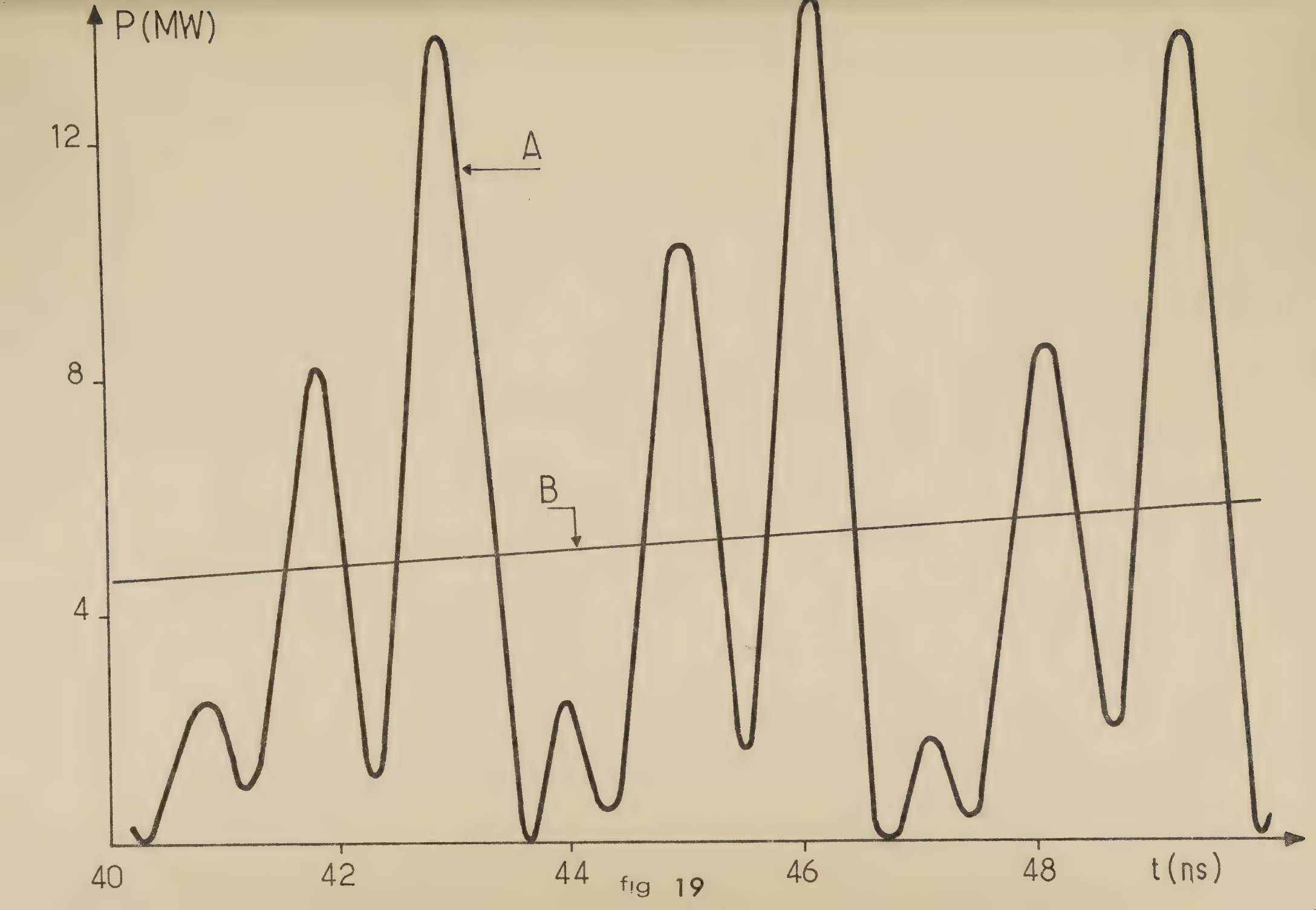


fig 19

CHAPITRE 5

DETERMINATION DE LA SECTION EFFICACE MULTIPHOTONIQUE DU NEON POUR LA FREQUENCE DU LASER A RUBIS

5.1 - Etude du volume d'interaction. Dépendance spatiale du phénomène [39]

Le nombre de charges formées par effet multiphotonique est donné par la relation :

$$n_e = n_o K \phi^N v t \qquad 5.1(1)$$

dans la mesure où le flux de lumière délivrée par le laser pendant le temps t est constant.

Comme nous l'avons vu au chapitre 2 (2.4.2), le volume d'interaction est très difficile à déterminer.

Nous avons vu au chapitre précédent que la puissance de sortie fluctuait. Il en est de même pour le flux.

Si T est la durée de l'impulsion laser, le nombre de charges formées s'écrit alors :

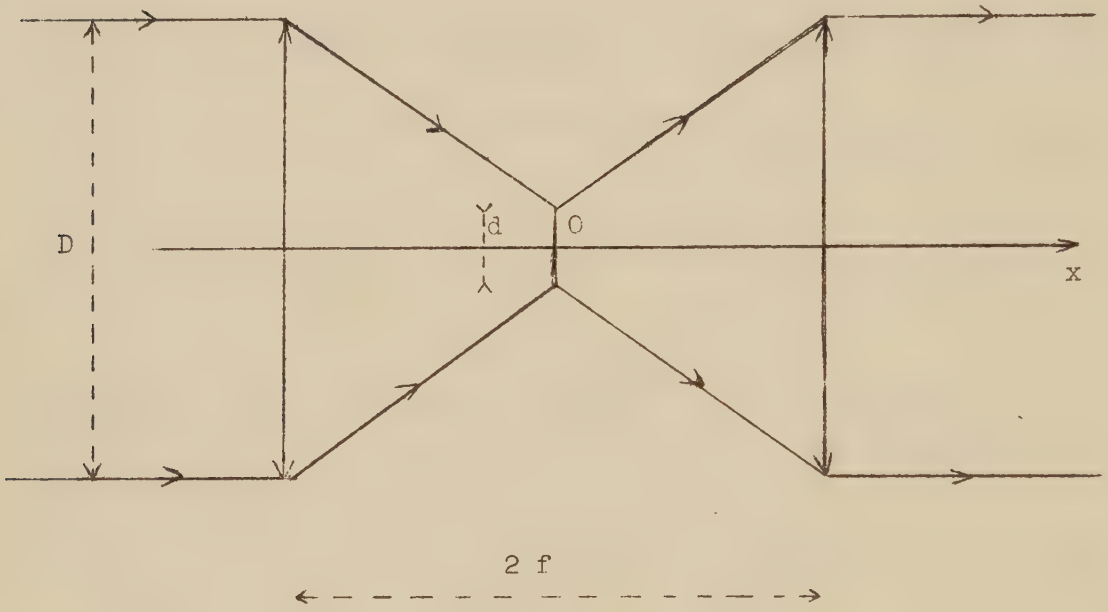
$$n_e = K_1 n_o \int_v \int_T \phi^N(t,v)\, dv\, dt \qquad 5.1(2)$$

Le flux de photons est une fonction de l'espace et du temps car la section du faisceau après la lentille de focalisation n'est pas constante.

$$\phi(s,t) = \frac{P(t)}{s}$$

Dans tout ce qui suit nous supposons que la distribution de flux dans une section droite du faisceau est uniforme.

Le volume compris entre les deux lentilles (voir figure) est assimilé à deux troncs de cones accolés par leur petite base.



La grande base est la surface de sortie du faisceau au niveau de la lentille et la petite base est la tache de focalisation au foyer. Cette tache provient de la divergence θ du faisceau ; elle a pour diamètre d = f θ.

Nous avons pris comme volume d'interaction tout le volume du faisceau compris entre les deux lentilles. Ainsi nous pouvons tenir compte de tous les évènements qui se produisent dans le gaz sous l'effet du rayonnement sans pour autant connaître le volume effectif d'interaction. Les contributions des parties du volume de grande section sont négligeables par rapport à celles de petite section car le flux y est relativement faible.

Comme le faisceau possède une symétrie de révolution, la surface d'une section du tronc de cone ne dépend que de sa position x dans le faisceau. Nous la noterons S(x). La relation 5.1(2) s'écrit alors :

$$n_e = 2 K_1 n_o \int_o^f \int_o^T \frac{P^N(t)}{S^N(x)} S(x)\, dx\, dt$$

Les variables x et t de cette intégrale se séparent :

$$n_e = 2 K_1 n_o \int_o^f S^{1-N}(x)\, dx \int_o^T P^N(t)\, dt$$

Posons :

$$G(N) = \int_o^f S^{1-N}(x)\, dx \qquad 5.1(3)$$

Calculons G(N,X) entre les bornes 0 et X abscisse le long du faisceau

$$S(x) = \pi \left[\frac{f\theta}{0} + \frac{D}{2f} |x|\right]^2$$

avec f distance focale de la lentille.

θ la divergence.

Δ le diamètre du faisceau avant focalisation.

$$G(N,X) = \int_o^X \{\pi\left[\frac{f\theta}{2} + \frac{D}{2f} |x|\right]^2\}^{1-N} dx \qquad 5.1(4)$$

$$= \pi^{1-N} \left(\frac{f\theta}{2}\right)^{2(1-N)} \int_o^X \left[1 + \frac{D}{f^2\theta} |x|\right]^{2(1-N)} dx$$

$$= \pi^{1-N} \left(\frac{f\theta}{2}\right)^{2(1-N)} \frac{f^2\theta}{D(3-2N)} \left[\left(1 + \frac{D}{f^2\theta} |x|\right)^{3-2N}\right]_o^X$$

$$= \pi^{1-N} \left(\frac{f\theta}{2}\right)^{2(1-N)} \frac{f^2\theta}{D(3-2N)} \left[1 - \left(1 + \frac{DX}{f^2\theta}\right)^{3-2N}\right]$$

Calculons le terme :

$$\left[1 + \frac{DX}{f^2\theta}\right]^{3-2N}$$

pour N = 13 X = 1 cm
D = 1 cm f = 4 cm et
$\theta = 10^{-3}$ rad.

$$\frac{DX}{f^2\theta} = 63,5$$

$$\left[1 + \frac{DX}{f^2\theta}\right]^{3-2N} = (63,5)^{-23} = 0,4\ 10^{-41}$$

Ce terme est négligeable par rapport à l'unité.

G(N,X) a déjà atteint sa valeur maximum pour X = 1 cm.

Pour X = f il aura pratiquement la même valeur.

Donc le terme de dépendance spatiale du phénomène pour N = 13 et f > 1 cm peut s'écrire :

$$G(N) = \left(\frac{\pi}{4}\right)^{1-N} \frac{1}{2N-3} \frac{f}{D} (f\theta)^{3-2N} \qquad 5.1(5)$$

Pour un N donnée , il ne dépend que de f et de θ et D (c'est à dire des dimensions géométriques du système).

On trouve, tous calculs faits, pour N = 13

$G(13) = 10^{-55,644}$ à 10^{-96} près par défaut!

La relation 5.1(2) devient :

$$n_e = K_1 n_o G(N) \int_o^T P^N(t)\, dt \qquad 5.1(6)$$

La connaissance de l'évolution de la puissance pendant le temps de l'impulsion laser nous permet de déterminer K_1.

5.2 - Détermination de la section efficace à partir des mesures

Nous avons mesuré expérimentalement n_e pour des températures du laser comprises entre -25 °C (1,78562 eV) et -60 °C (1,78615 eV) K_1 est tiré de la relation 5.1(6).

$$K_1 = \frac{n_e}{n_o G(N) \int_o^T P^N dt} \qquad 5.2(1)$$

L'intégrale $\int_o^T P^N dt$ a été calculée numériquement à partir des valeurs de P(t), puissance instantanée émise par laser. Les valeurs de K_1 déduites de ces mesures sont représentées sur la courbe de la figure 20.

Nous retrouvons pour K la résonance préalablement mise en évidence à la température de -39 °C, correspondant à une énergie de photons de 1,78584 eV.

5.3 - Discussion des résultats

Nos résultats expérimentaux sont de 3 ordres de grandeur inférieurs à ceux calculer théoriquement par Bebb et Gold [16].

Etant données les grandes difficultés expérimentales, on peut considérer que nous sommes en bon accord avec cette théorie.

Les résultats théoriques de Morton [17] sont de 13 ordres de grandeur plus faibles.

Nous sommes par ailleurs en accord avec toutes les théories sur la valeur du nombre N, ordre d'effet multiphotonique.

Il importe de comparer nos résultats à ceux des autres expérimentateurs [37] [42]. Ceux-ci déterminent essentiellement la dépendance de N sur la probabilité d'ionisation en mesurant le nombre de charges formées en fonction du flux de lumière laser.

Ils prennent, pour déterminer cette dépandance, la pente de la droite

$$\text{Log } w = N \text{ Log } \phi + \text{Cte}$$

où w est la probabilité d'ionisation.

N le nombre de photons qui interagissent avec l'atome.

ϕ le flux des photons.

Ils trouvent pour la pente de leur droite un N effectif toujours inférieur au N_o théorique défini par

$$N_o \geq E_i/\hbar\omega$$

Il est difficile, étant données les fortes barres d'erreurs sur les valeurs du nombre de charges, de connaître avec précision la pente de la droite donnant N_{eff} (voir courbes référence [26]).

Il n'a pas été tenu compte dans ces mesures de la structure de la lumière émise par le laser, c'est à dire des surintensités de flux.

Les résultats des soviétiques ne sont cependant pas incompatibles avec les nôtres.

Ceux-ci ont travaillé essentiellement sur le Krypton et le Xénon avec un laser au Néodyme.

Dans ces conditions les niveaux pseudo-résonnants qu'ils considèrent sont très bien couplés avec le rayonnement du laser (voir remarques au chapitre 3), pour que l'électron optique puisse effectuer à partir de ces niveaux :

- une transition vers le continu (photoionisation) ;
- une transition vers le niveau discret le plus proche (effet Stark haute fréquence).

L'effet de perturbation du champ électrique intense nécessaire à l'ionisation est très important et N_{eff} peut être différent de N_o.

Par ailleurs, ils n'ont pas envisagé de travailler sur le néon, car ils ont considéré que le niveau 11p résonnant était rejeté dans le "continuum".

C'est ce qui se passe lorsque le largeur de la raie laser est bien supérieure à l'écart d'énergie entre deux niveaux consécutifs. Le laser "voit" alors les états d'énergie de l'atome dans cette région comme un "pseudo-continu".

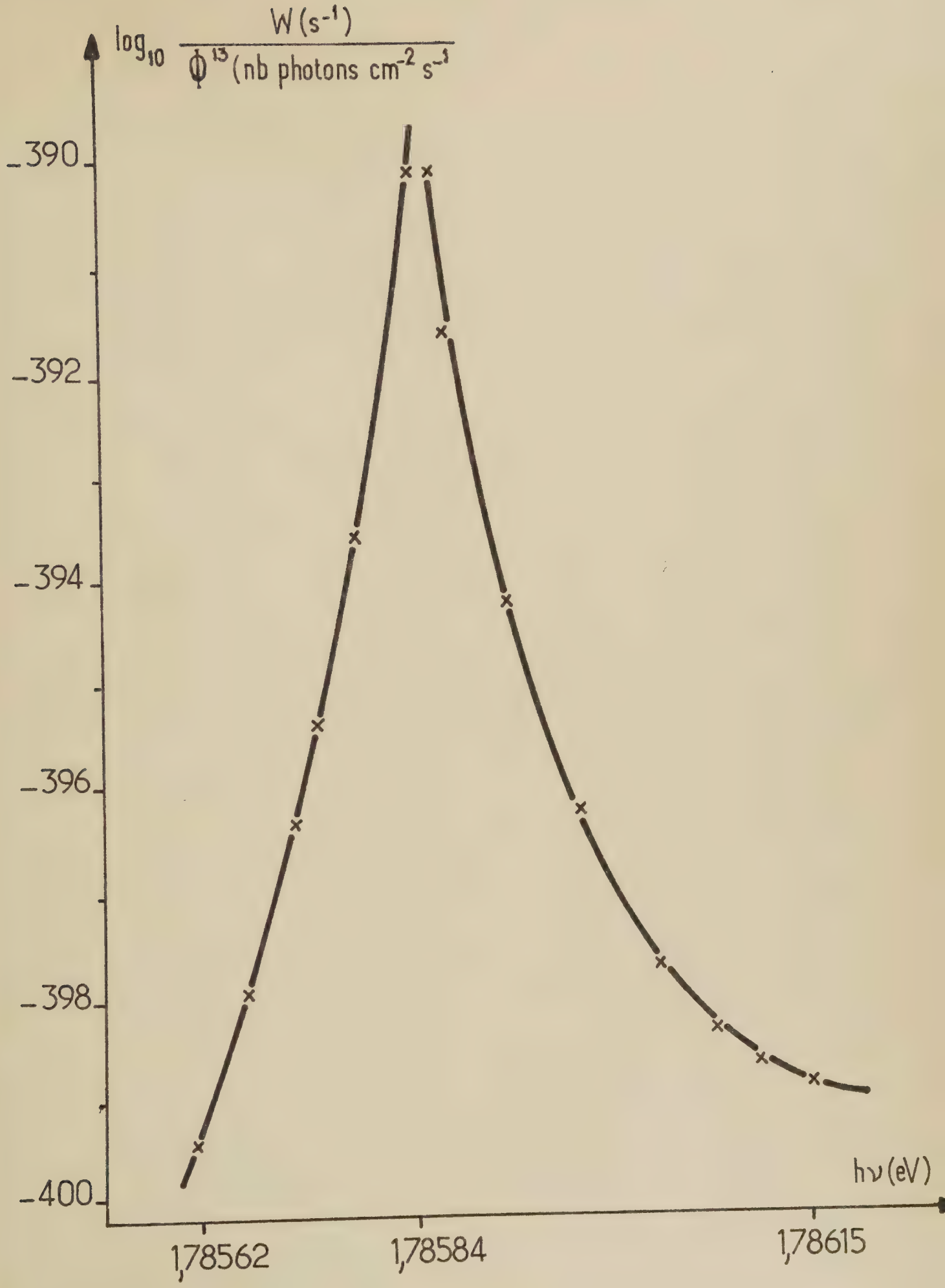

log10 W(s-1) / Φ13 (nb photons cm-2 s-1)
-390
-392
-394
-396
-398
-400
hν(eV)
1,78562
1,78584
1,78615

fig 20

CONCLUSION

Nous avons vérifié la théorie multiphotonique appliquée au Néon en faisant apparaître une résonance dans la loi qui relie le nombre de charges formées par photoionisation à l'énergie des photons incidents (Laser à rubis).

Nous sommes en accord avec les théories quant au nombre N qui mesure l'ordre d'effet multiphotonique.

Nous avons trouvé :

$$N = N_o = 13$$

et $$N_{résonnant} = 12.$$

Nous avons montré que le couplage résonnant se faisait sur le niveau fortement excité du néon : $11p[3/2]_{1,2}$, malgré l'existence de champs électriques intenses (10^7 volts par centimètre) susceptibles de perturber les niveaux de l'atome.

Le déplacement Stark et l'élargissement de ce niveau qui en résultant sont négligeables pour les raisons suivantes :

1°) Le niveau $11p[3/2]_{1,2}$ est à 1057 cm^{-1} du niveau d'ionisation. La section efficace de photoionisation du néon excité sur ce niveau est relativement faible pour une fréquence de 14.400 cm^{-1} correspondant à la fréquence du laser. L'élargissement qui résulte de la photoionisation est de 0,068 cm^{-1}.

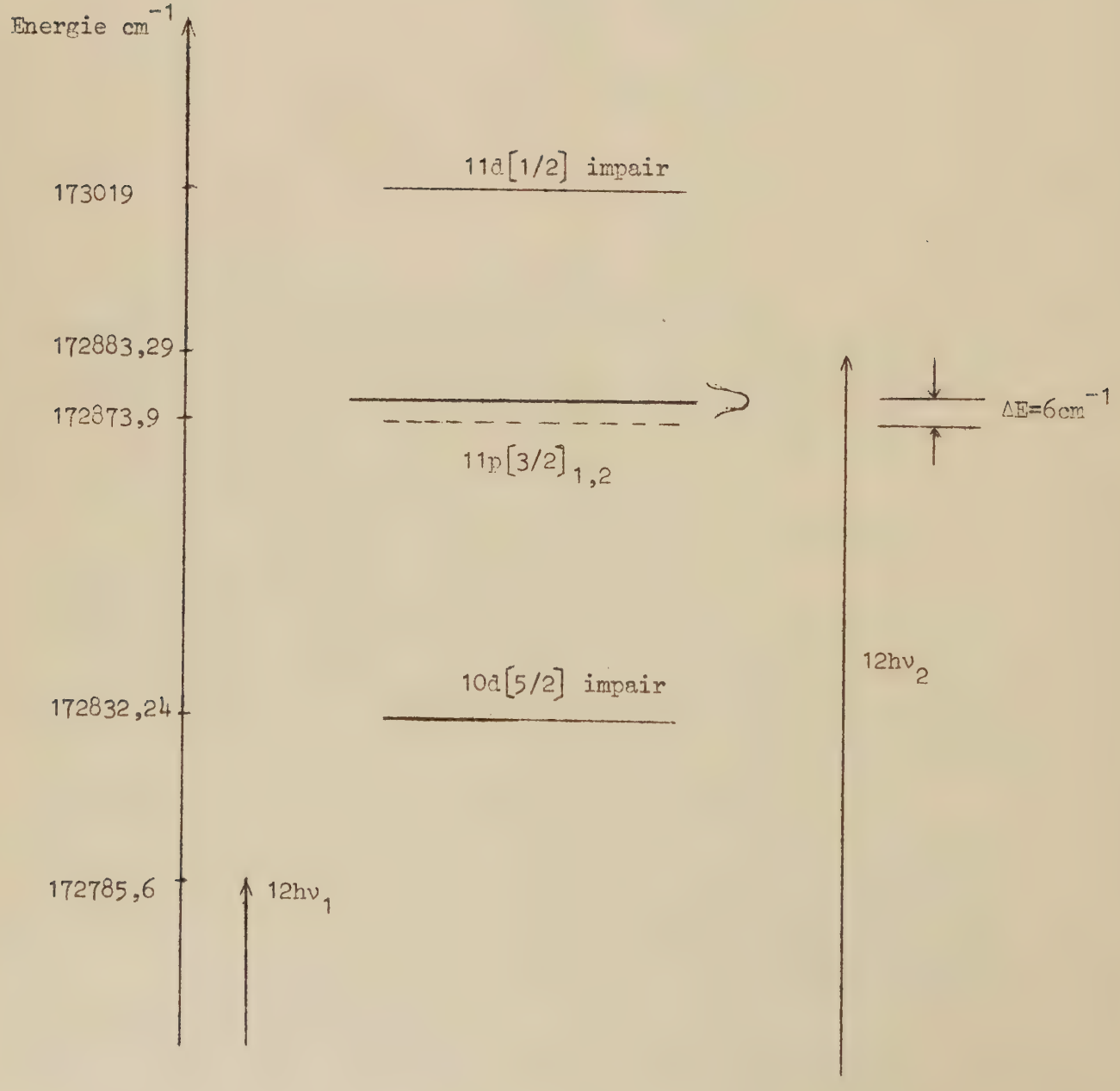
2°) Le niveau $11p[3/2]_{1,2}$ est à 41,66 cm^{-1} du niveau $10d\ 5/2\ ^{o}_{3}$ et à 145,1 cm^{-1} du niveau $11d[1/2]_{0,1}$. Les fréquences correspondant aux transitions 11p → 10d et 11p → 11d sont très mal couplées avec la fréquence du laser (14.400 cm^{-1}). Le déplacement dû à l'effet Stark qui est ici un effet très haute fréquence est de 6 cm^{-1}.

Par ailleurs, la largeur de la raie de notre laser à rubis, quelques 10^{-1} cm^{-1}, est bien inférieure à l'écart entre le niveau

11p et le niveau le plus proche. Le niveau 11p reste isolé pour une telle raie.

Pour terminer nous avons mesuré la section efficace d'ionisation multiphotonique du néon par des photons de 1,785 eV (laser à rubis). Nos valeurs expérimentales confirment les valeurs théoriques calculées par Bebb et Gold.

Le schéma ci-dessous résume notre conclusion.



APPENDICE

CALCUL DES MOMENTS DIPOLAIRES D_{nm}

En général pour les transitions nm situées dans les longueurs d'onde visibles, les valeurs de D_{nm} sont tabulées ; elles peuvent se déduire des forces d'oscillateur f_{nm} [33].

Dans le cas des transitions 11p → 11d et 11p → 10d, distantes de quelques dizaines de cm^{-1} nous sommes obligés de calculer les moments dipolaires. Pour cela, nous utilisons la méthode proposée par Bates et Damgaard [30] dite méthode du défaut quantique.

Cette méthode permet le calcul de D^2_{nm} à partir des valeurs tabulées en suivant le schéma de calcul ci-dessous.

Le moment dipolaire est donné par la relation :

$$D^2_{nm} = S(M)S(L)\sigma^2$$

- avec S(L) et S(M) des facteurs dépendant respectivement de l'intensité de la transition nm par rapport à celle de ses multiplets et de l'intensité relative des multiplets entre eux.

Les valeurs de S(L) et S(M) sont tabulées pour chaque type de transition dans [43]

- et avec $\sigma(n^*_{\ell-1}, \ell-1 ; n^*_{\ell}, \ell ; Z) = \frac{1}{Z} \mathcal{F}(n^*_{\ell}, \ell)\mathcal{F}(n^*_{\ell-1}, \ell-1)$

relation où :

$$n^* = \frac{Z}{\sqrt{E_i - E_n}} = Z \sqrt{\frac{109,737,3}{E_i - E_n}}$$

est le niveau effectif, et où :

$$\mathcal{F}(n^*,\ell) = \frac{3n^*_\ell}{2}\left\{\frac{(n^{*2}_\ell - \ell^2)}{(4\ell^2 - 1)}\right\}^{1/2}$$

La valeur de $\mathcal{F}(n^*_{\ell-1}, n^*_\ell, \ell)$ est une grandeur tabulée [34] pour n^*_ℓ, $n^*_{\ell-1}$ et ℓ.

Exemple numérique du calcul du coefficient σ :

Soient les deux niveaux

$2p^5(^2P_{3/2})11p$ d'énergie 172.873,9 cm^{-1}

$2p^5(^2P_{3/2})10d$ d'énergie 172.832,24 cm^{-1}

Les deux valeurs des niveaux "effectifs" sont

$n^*_{11p} \sim 10,18 = (n^*_{11p}, \ell-1)$

$n^*_{10d} \sim 9,99 = (n^*_{10d}, \ell)$

La transition considérée étant une transition p-d, nous avons $\ell = 2$. Le type de transition p-d étant, ainsi que n^*_ℓ et $n^*_{\ell-1}$, comme nous calculons aisément $D^2_{n^*_\ell, n^*_{\ell-1}}$ à partir des grandeurs :

$\mathcal{F}(n^*_\ell, \ell)$; $\mathcal{F}(n^*_{\ell-1}, n^*_\ell, \ell)$ et S(M) et S(L) données dans [34] [43].

C'est ainsi que l'on trouve pour les deux moments dipolaires considérés $D^2_{11p,10d}$ et $D^2_{11p,11d}$ des valeurs de l'ordre de 10^4 unités $e^2 a_o^2$.

REFERENCES

[1] R.G. MEYERLAND, A.F. HAUGHT. Phys. Rev. Letters, 11, 401 (1963) ; 13, 7 (1964).

[2] R.W. MINK. J. Appl. Phys. 35, 352 (1964).

[3] F.V. BUNKIN et A.M. PROKHOROV. Sov. Phys. J.E.T.P. 19, 739 (1964).

[4] R.G. TOURLINSON. Phys. Rev. Letters 14, 489 (1965).

[5] Yu. P. RAIZER. Sov. Phys. Uspekii 8, 650 (1966).

[6] B.A. TOZER. Phys. Rev. 137A, 1665 (1965).

[7] P. NELSON. Rapport C.E.A. n° R 2888, Saclay (1965).

[8] A. GOLD et H. BEBB. Phys. Rev. Letters 14, 60 (1965).

[9] J.L. DELCROIX. Journal de Physique 29 C3, 3 (1968).

[10] ZELDOVITCH - RAIZER. J.E.T.P. 20, 772 (1965).

[11] ASKARYAN - RABINOVITCH. J.E.T.P. 21, 190 (1965).

[12] G. LAMPIS. Quart. Prog. Rep.

[13] G. SULTAN. Thèse de Doctorat. Faculté Orsay (1971).

[14] M. BARANGER, B. MOZER. Phys. Rev. 123, 25 (1961).

[15] G. BARAVIAN, R. BENATTAR, J. BRETAGNE, J.L. GODART, G. SULTAN. Phys. Letters 30A, 198 (1969).

[16] H.B. BEBB et A. GOLD. Phys. Rev. 143, 1-24 (1966).

[17] V.M. MORTON. Proc. Phys. Soc. 92, 301 (1967).

[18] L.V. KELDYSH. Sov. Phys. J.E.T.P. 20, 1307 (1965).

[19] O.S. HEAVENS. Optical Maser, p. 50 (1964).

[20] BELA A. LENGYEL. Introduction à la Physique. Eyrolles ed., p. 127 (1968).

[21] WALKER et STRAW. Spectroscopy Chapman et Hall ed. 169-170 (1961).

[22] J.R. IZATT, R.C. MITCHELL. J. Appl. Phys. 37, 1658 (1966).

[23] SURUGUE. Techniques Générales du Laboratoire de Physique, Ed. C.N.R.S. Vol. II, p. 285 (1962).

[24] G. BARAVIAN, R. BENATTAR, J. BRETAGNE, J.L. GODART, G. SULTAN. Appl. Phys. Letters, 16, 162 (1970).

[25] G. BARAVIAN, R. BENATTAR, J. BRETAGNE, G. CALLEDE, J.L. GODART, G. SULTAN. Rapport interne L.P. 103 (1969).

[26] G.S. VORONOV, G.A. DELONE, N.B. DELONE, L.V. KELDYSH, M.S. RABINOVITCH. 7ème C.I.P.I.G. Belgrade, p. 806 (1965).

[27] S.H. AUTLER, C.H. TOWNES. Phys. Rev., 100, 703 (1955).

[28] DAVITKIN, ZON, MANAKOV. RAPOPORT.Preprint Lebedev (1970).
[29] VORONOV. Sov. Phys. J.E.T.P. 24, 1009 (1967).
[30] E.B. ALEKSANDROV, A.M. BONCH-BRUEVITCH, N.N. KOSTIN, V.A. KHODOVOI. J.E.T.P. Letters, 3, 53 (1966).
[31] GRAVILA M. Phys. Rev., 163, 147 (1967).
[32] W. HEITLER. The quantum theory of radiation (Oxford Un. Press N.Y.) 192 (1954).
[33] W.L. WIESE, M.W. SMITH, B.M. GLENNON. Atomic transition probabilities N.S.R.D.S. (1966).
[34] D.R. BATES et A. DAMGAARD. Phil. Trans. 242, 101 (1949).
[35] S. KANEKO et S. ARAI. J. Phys. Soc. of Japan, 26, 170 (1969).
[36] RICHTER. Chap. I. Plasma diagnostic North Hall. Pub. Comp. (1968).
[37] DELONE G.A., DELONE N.B., M.P. DOUSKAYA, K.B. BETROSIAN. 9ème C.I.P.I.G. Bucarestn p. 42 (1969).
[38] V.A. KOVARSKY. 9ème C.I.P.I.G. Bucarest, p. 38 (1969).
[39] G. BARAVIAN, R. BENATTAR, J. BRETAGNE, G. CALLEDE, J.L. GODART, G. SULTAN Appl. Phys. Letters, 18, 387 (1971).
[40] J.G. MEADORS. I.E.E.E. J.Q.E. Vol. QE2, n° 9, 638 (1966).
[41] BRUHAT. Optique 6ème ed. Masson et Cie, p. 162 (1965).
[42] AGOSTINI, BARJOT, BONNAL, MAINFRAY, MANUS, Quantum Electronics QE4, 10, (1968).
[43] G.W. ALLEN. Astrophysical quantities. Athlone Press (1955).